原子力人材育成プログラム事業

（原子力総合技術プログラム）

平成２２年度成果報告書

平成２３年２月

国立大学法人　東京工業大学

本報告書は、国立大学法人　東京工業大学が、経済産業省からの委託を受けて
実施した事業の成果報告書です。

要旨

本事業では、東京工業大学大学院原子核工学専攻（以下、「東工大」という。）、東海大学大学院工学研究科応用理学専攻（以下、「東海大」という。）及び茨城大学大学院理工学研究科（以下、「茨城大」という。）が、これまで培ってきた原子力教育のそれぞれの特色を有効に活用し、更に連携することで、より一層充実した教育システムを構築することを目指したものである。

東工大での核燃料物質を用いることができる施設を活かした実験を主体とした核燃料サイクルに関する教育、東海大での非密封線源使用施設で実施してきた放射化学教育、茨城大での日本の原子力関連施設の中心に位置する地の利を活かした実践教育を連携する各大学に広げた教育システムを構築し、大学間連携を有効に利用して放射化学及びアクチノイド化学の知識を有する核燃料サイクル工学全般を理解した原子力の専門家の育成を目指して以下の業務を行った。

上記の大学間で連携ネットワークを構築し、核燃料サイクルに関する基礎知識と放射性核種及び核燃料物質を用いた教育実験を行実践的な原子核工学教育（実践的教育実験コース）と産業界の一線で活躍されている方を招いた講演を通した実践教育（実践的原子力人材育成講義コース）、及び原子力関連施設での研修（実践的原子力人材育成研修コース）からなる核燃料サイクルの実践的人材育成カリキュラムを構築した。

目次

1. はじめに ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1
1.1 事業実施の背景と目的 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1
1.2 事業の実施目標 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1

2. 実施計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
2.1 平成 22 年度実施計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
2.1.1 実践的教育実験コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
2.1.2 実践的原子力人材育成講義コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
2.1.3 実践的原子力人材育成研修コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
2.2 実施体制 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3

3. 成果の概要 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4
3.1 実践的教育実験コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4
3.2 実践的原子力人材育成講義コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4
3.3 実践的原子力人材育成研修コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4
3.4 大学間連携 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4
3.5 その他 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4

4. 当該年度の実施内容及び成果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5
4.1 実践的教育実験コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5
4.1.1 核燃料サイクル実験 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5
4.1.2 放射化学実験 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ １５
4.2 実践的原子力人材育成講義コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ １７
4.3 実践的原子力人材育成研修コース ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ １８
4.3.1 日本原子力研究開発機構 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ １８
4.3.2 日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ １８
4.3.3 三菱原子燃料株式会社 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ １９
4.4 大学間連合の打合せ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ ２０

5. まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ ２２

添付資料

添付１　「原子核工学実験第２　核燃料サイクル工学実験テキスト」

添付２　「核燃料サイクル工学実験テキスト」

添付３　「実践的教育実験コース　放射化学及び放射線測定に関する教育実験　実験テキスト」

添付４　実践的原子力人材育成講義コースで用いた講義資料（千代田テクノル阿部講師）

１．はじめに

1.1 事業実施の背景及び目的

現在、原子力はエネルギーの持続的供給と地球温暖化対策の切り札として、益々重要度が増している。そのような状況下、日本の原子力関連産業は、世界的に見ても最先端の技術とノウハウを有し、世界をリードしてきている。しかし、拡大する原子力産業の維持とさらなる日本の原子力の発展には、実践的な知識を持った優秀な人材を育成することが必要不可欠である。とりわけ、核燃料サイクルの分野においては、実際に核燃料物質や放射性物質を用いた実験教育を受けた学生は少なく、今後、重要度が増す再処理や放射性廃棄物の処理・処分問題を解決するためにも、核燃料サイクルに関わる実験教育を強化する必要がある。

本事業では、大学間連携を有効に利用して、放射化学及びアクチノイド化学の知識を有する核燃料サイクル工学全般を理解した原子力の専門家の育成を目的として実施するものである。

1.2 事業の実施目標

本事業の最終目標は、各大学で培ってきた原子力教育を最大限に利用できるような大学間連携を構築し、その大学間連携を有効に利用して放射化学、放射線計測及びアクチノイドの化学の知識を有する核燃料サイクル工学全般を理解し、かつ社会への強い責任と倫理観を備えた原子力の専門家を育成することである。

本事業では、まず大学間の連携ネットワークを結ぶことが第一の目標である。つまり、各大学の特色を最大限に活用するためには大学間連携が不可欠であるが、大学間の連携に関しては相互協定、大学院生の受け入れ制度の確立、単位認定について制度の確立など様々な解決すべきことがある。したがって、本年度は少なくとも学生が各大学間で実験教育等を受けられるような制度を確立させる。

次に、具体的に学生を教育する３つの実践コースの目標を以下に示す。

１．実践的教育実験コースの構築

大学間連携による実践的な教育実験プログラムの構築を行う。具体的には、本年度実施する実践的教育実験コースの実験プログラムが大学院生の実験的講義として時間内に十分納まり、かつレベル的にも十分に教育効果があるものであることを確認する。この確認には、東工大及び東海大に所属する学生による教育実験の実施により行う。続いて、東工大の核燃料使用施設及び東海大の非密封線源取扱施設に大学間連携協定を結んだ大学の学生と教員に参加してもらい、実際に他大学の学生に施設内で実験を実施してもらい、問題点等の洗い出し等を行う。

２．実践的原子力人材育成講義コースの構築

大学間連携講義による幅広い教養を持った人材育成のためのプログラムを構築する。具体的には、講義による学生の教育を行うのはもちろんのこと、大学の連携による講義システムの可能性を探ると共に問題点を抽出し、実践的原子力人材育成講義コースが実際に有効に機能するプログラムを検討する。

３．実践的原子力人材育成研修コースの構築

大学間連携を利用した原子力施設での研修を通して実践的な人材育成を行うプログラムを構築する。具体的には、学生に原子力関連企業及び原子力機構での燃料製造等の見学や体験をさせる。

２．実施計画

2.1 平成 22 年度の実施計画

本事業に参加する東京工業大学大学院原子核工学専攻（以下、「東工大」という。）、東海大学大学院工学研究科応用理学専攻（以下、「東海大」という。）及び茨城大学大学院理工学研究科（以下、「茨城大」という。）は、長年にわたり原子力教育を行ってきている。すなわち、東工大は、原子力教育を目的とする大学院を設立して以来、今まで一貫して原子力教育を行い、多くの卒業生を産業界に送り出しており、原子力システム、炉物理、放射線及び核燃料サイクルに関わる講義による教育、炉物理の実践的実験教育及び核燃料サイクルの実践的実験教育を行ってきた。東海大では、原子力技術者の育成に向けた総合教育である「原子力技術コース」を学部において開設し、学内の放射線取扱施設における非密封線源を用いた放射化学実習と原子炉を用いた炉物理実習を行い、放射線取扱主任者試験の合格などを認定要件とする極めて特徴ある教育コースを実施している。茨城大では、近隣の原子力研究施設との連携による「原子力工学教育プログラム」を立ち上げ、コース制による大学院教育を行っている。

そこで、本提案事業では、前述した各校がこれまで培ってきた原子力教育のそれぞれの特色を有効に活用し、それをさらに連携することで、より一層充実した教育システムを構築することを目指している。つまり、東工大での核燃料物質を用いることが出来る施設を活かした実験を主体とした核燃料サイクルに関する教育、東海大での非密封線源使用施設で実施してきた放射化学教育、茨城大での日本の原子力関連施設の中心に位置する地の利を活かした実践教育を連携大学に広げた教育システムを構築し、大学間連携を有効に利用して放射化学及びアクチノイド化学の知識を有する核燃料サイクル工学全般を理解した原子力の専門家の育成を目指すものである。

そのため、まず上記の大学間で連携ネットワークを構築し、核燃料サイクルに関する知識と共に高い社会倫理性を身につけた人材の育成を目的に、実際に大学院生が放射性同位元素や核燃料物質を用いた教育実験を行う実践的な原子核工学教育（実践的教育実験コース）と産業界の一線で活躍されている方を招いた講演を通した実践教育（実践的原子力人材育成講義コース）、及び原子力関連施設での研修（実践的原子力人材育成研修コース）からなる核燃料サイクルの実践的人材育成カリキュラムの構築を目指す。

2.1.1　実践的教育実験コース

本コースは、非密封線源を用いた放射化学及び放射線測定に関する教育実験並びにウランを用いた核燃料サイクルに関する教育実験である。放射化学及び放射線測定に関する教育実験では、トレーサレベルの混合核種を共沈法による核種分離、90Sr90Y ジェネレータを

用いた放射化学無担体分離を実施し、それら核種を NaI シンチレータと Ge 半導体検出器を用いたγ線測定、液体シンチレータを用いたβ線測定を行い、放射線計測の基礎を習得させる。核燃料サイクルに関する教育実験では、核燃料サイクルのフロントエンドからバックエンドの一連の流れを体感的に理解させるため「ウランの精製・転換」、「同位体濃縮」、「燃料再処理」及び「廃棄物処分」に関する実験を、実際にウランを用いて学生に実施させる。また、核種同定及び濃度評価はα線測定と蛍光 X 線測定の異なる方法により実施し、α線の測定法と元素分析法についても学ばせる。同位体濃縮実験はウランの代わりにリチウムを用いて行うが、同位体比測定では表面電離型質量分析法により実施させ、質量分析の原理と同位体の概念についても学習させる。以上の教育実験は、東工大の核燃料取扱施設及び東海大の放射線取扱施設で実施し、事前講義もしくは予備実験等は必要に応じて各大学で行う。本コースでは、大学間で連携して行うことを考慮し、数日間もしくは１週間で集中的に実施しうるカリキュラムの構築を目指す。本年度は大学間の連携ネットワーク構築と核燃料取扱施設及び放射線取扱施設の学外利用の制度構築を中心に行う。

2.1.2　実践的原子力人材育成講義コース

本コースでは、放射線計測や放射科学技術の第一線で活躍している方々を招いて、現場での体験等について講義して頂き、知識としての実践教育である「放射線管理の実際」及び「原子力産業における放射化学技術の活用」の講義を行う。「放射線管理の実際」及び「原子力産業における放射化学技術の活用」は東海大学で実施する。

2.1.3　実践的原子力人材育成研修コース

本コースにおいては、上記の教育で得られた知見が、実際に現場でどのように活用されているかを実際に経験し、知識を実体験として自分のものにするために、茨城県周辺の数箇所の原子力関連施設での研修を実施する。本研修は、茨城大学の主催により行い、数箇所の原子力関連施設を回って実施する。

2.2 実施体制

東工大が本事業の代表であり、実施責任者は東工大池田泰久であり、事業全体を統括している。実務担当者は東工大鈴木達也であり、実務を担当すると共に池田泰久を補佐している。実践的教育実験コースは、核燃料サイクルに関する教育実験を東工大が担当し、放射化学に関する教育実験を東海大が担当している。実践的原子力人材育成講義コースは東海大が担当している。実践的原子力人材育成研修コースは茨城大が担当している。東工大が実施する業務は、鈴木達也が全体を統括している。東海大が実施している業務は伊藤敦が全体を統括している。茨城大学は、田中伸厚が全体を統括している。

本事業を、実態のあるものにするため、３校の代表者が集まり、会議を行う。会議は各コースを実施する前に実施計画及びスケジュールの確認を行うために１回と前コース終了後に事業の問題点等の洗い出しと来年度の計画に向けての打合せのために１回行う。

3. 成果の概要

3.1　実践的教育実験コース

本コースは、非密封線源を用いた放射化学及び放射線測定に関する教育実験並びにウランを用いた核燃料サイクルに関する教育実験であり、以下の業務を行い、以下のような成果を得た。

- 放射化学及び放射線測定に関する教育実験として、^{90}Ｓｒと^{137}Ｃｓを用いたトレーサレベルの混合核種を共沈法による核種分離、それら核種をＮａＩシンチレータとＧｅ半導体検出器を用いたγ線測定等を行い。放射線計測の基礎を習得させた。
- 核燃料サイクルに関する教育実験では、「ウランの精製・転換」、「同位体濃縮」、「燃料再処理」及び「廃棄物処分」に関する実験を、実際にウランを用いて学生に実施させた。
  - ＊上記の実験により、核燃料サイクルのフロントエンドからバックエンドの一連の流れを体感的に理解させた。
  - ＊核種同定及び濃度評価はα線測定と蛍光Ｘ線測定の異なる方法により実施し、α線の測定法と元素分析法についても学ばせた。
  - ＊同位体比測定では表面電離型質量分析法により実施させ、質量分析の原理と同位体分離の概念についても学習させた。

3.2　実践的原子力人材育成講義コース

本コースでは、放射線計測や放射科学技術の第一線で活躍している方々を招いて、現場での体験等に基づいた「放射線管理の実際」及び「原子力産業における放射化学技術の活用」の講義をして頂き、原子力関連施設での実際の現場の体験を話をしていただくことにより、大学院生に実践的知識を身に付けてもらった。

3.3　実践的原子力人材育成研修コース

本コースにおいては、茨城県の原子力関連施設（原子力機構、日立 GE、三菱原子燃料）で研修を実施し、実際に現場でどのように活用されているかを大学院生に経験してもらい、知識を自分のものとしてもらった。

3.4　大学間連携

実践的教育実験コースの放射化学に関する教育実験に関する教育実験及び原子力人材育成講義コースは事業開始時期の関係で東工大は単位に組み込むことが出来なかったが、本事業の各コースを、東工大、茨城大、東海大の正規の講義として組み込み単位とすることが出来た。

3.5　その他

ＴＡで大学院の学生を教育に参加させることにより、若手研究者に指導能力を持たせることにも寄与した。

４．当該年度の実施内容及び成果

4.1 実践的教育実験コース

実験的教育実験コースは、核燃料サイクル実験と放射化学実験の２種類がそれぞれ東工大の核燃料使用施設と東海大の放射線取扱施設を用いて実施された。

4.1.1 核燃料サイクル実験

核燃料サイクル実験は、人数の関係で東工大の大学院生が参加して行うものと、茨城大と東海大の大学院生が参加して行うものと２回に分けて行った。核燃料サイクル実験は「１．精製・転換工程コース」、「２．濃縮工程コース」、「３．再処理工程コース」、及び「４．廃棄物処理コース」の４つのコースで構成されている。実験の実施は、東工大実施後、茨城大と東海大が実施した。東工大の大学院生が参加した実験は、１回３時間の実験を週１回行い、各コースを２回ずつ実施している。また、教育訓練を含む事前講義を１回実施している。東工大の大学院生は１１人が参加した。１１人を３つのグループに分けて実施した。茨城大と東海大の大学院生が参加した実験は、東工大の大学院生が参加した実験が終了後、行っており、茨城大から６名の大学院生が、東海大からは３名の大学院生が参加して行われた。学生をＡ，Ｂ二班に分けて、３日間の集中講義方式で行った。以下のようなスケジュールで行った。

１日目
１３：３０～１４：３０　教育訓練
１５：００～１８：１０　精製・転換工程コース（Ａ班），再処理工程コース（Ｂ班）
２日目
９：００～１２：１０　廃棄物処理実験コース（Ａ班），精製・転換工程コース（Ｂ班）
１３：２０～１６：３０　濃縮工程コース（Ａ班，Ｂ班）
３日目
９：００～１２：１０　濃縮工程コース（Ａ班，Ｂ班）
１３：２０～１６：３０　再処理工程コース（Ａ班），廃棄物処理実験コースＢ班）
１６：３０～１７：３０　ディスカッション

東工大の大学院生が参加した実験では、添付１の「原子核工学実験第２　核燃料サイクル工学実験テキスト」を用いた。茨城大と東海大の大学院生が参加した実験では、添付２の「核燃料サイクル工学実験テキスト」を用いた。後者は前者をもとに集中講義形式に対応できるように直したものである。また、後者は、今までに原子力について学んだことがない学生にも、実施する実験が核燃料サイクルでどのような位置付けとなるかわかるように簡単な説明を加えている。また、ティーチングアシスタント等で若手研究者を教育に参加させることにより、若手研究者に指導能力を持たせるための人材育成も行った。

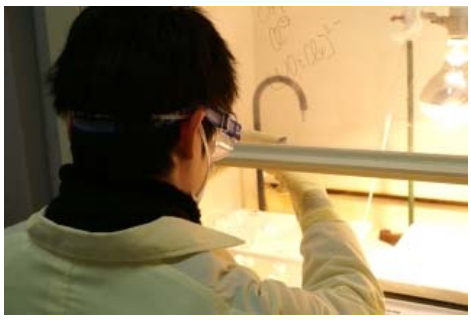
４つのコースについての実施内容及び成果については以下に示す。

(1) 精製・転換工程コース

精製・転換コースでは核燃料サイクルにおけるフロントエンドで、ウラン鉱石からウランを精製する方法として用いられる沈殿法を実際に大学院学生に授業として実験教育を行った。

実施した内容はウラニル溶液(UO_2^{2+}イオンを含む溶液)からアンモニアによる重ウラン酸アンモニウムの沈殿生成の試験と過酸化水素添加による過酸化ウランの沈殿生成と不純物元素としてアルカリ金属のセシウム、アルカリ土類金属のストロンチウム、希土類元素のユーロピウムを加えたときのそれら元素の精製試験である。これらの試験により、大学院学生に沈殿法によりウランの精製が可能であることを確認させると共にウラン化合物の性状やα線スペクトロメトリによるウランの放射能について実験を通して体験させ理解させた。

実験手順は、添付資料１と２に詳細に書かれているので省略し、以下重要な点のみ示すことにする。なお、実験手順は、東工大の大学院生が参加したものと、茨城大と東海大の大学院生が参加したものと同じである。まず、金属イオンとしてウラニルイオンのみを含む水溶液を用いて、アンモニア添加による沈殿生成と過酸化水素添加による沈殿生成を行った。この生じた沈殿をガラスろ過器に通すことにより、生成した沈殿である重ウラン酸アンモニウムと四酸化ウランの性状を大学院生に把握させた。また、アンモニアを用いた沈殿生成の試験では、沈殿率評価の方法にα線スペクトロメトリによる方法と蛍光 X 線による測定を併用し、それらの測定法の原理と特長について参加した学生に学ばせている。特にα線スペクトロメトリでは、ウラン-238 とウラン 235 の存在割合と放射能の違い、α線のエネルギーと半減期の関係などを説明し、放射化学的基礎についても学ばせた。また、その結果、実際にウランの放射能はどの程度であるかと言うことを体験させた。次に、セシウム、ストロンチウム、ユーロピウムをウランに混合させた試料を用いて、アンモニア添加による沈殿法と過酸化水素添加による沈殿法によるウランの精製実験を行った。精製実験ではろ過ではなく、遠心分離器により沈殿物と溶液の分離を行った。ろ過を用いる方法では溶液中で生成された固体粒子が十分な大きさに成長するまで十分に沈殿熟成させる必用があるためあう程度時間をおく必要があり、また熟成の度合いにより沈殿物の粒径が異なるため、ろ過器の細孔を通り抜ける沈殿物の量が異なり、結果として実験を行うものにより精製の度合い（除染係数）に大きな差が生じる。遠心分離では、沈殿物がほぼ全て取り除くことが可能で、また、大幅な時間短縮も可能となった。遠心分離の導入の効果について東工大の大学院生が参加した実験で確認でき、集中講義方式に十分対応できると判断した。なお、東工大の大学院生が参加した実験では２日目（２回目）に実施した。茨城大と東海大の大学院生が参加した実験では、沈殿生成試験実施中のα線スペクトロメトリ測定の待ち時間を利用して行った。なお、前述のスケジュールでは各班の「精製・転換工程コース」は半日しか取られていないが、沈殿法によりウランを取り除いた溶液のα線スペクトロメトリでは時間が足りないため、その時間内でα線スペクトロメトリ装置に試料を設置し、10 時間測定し、翌日の「廃棄物処理実験コース」の時間に少し時間をもらい、試料とデータを取り出すと共に解説を行った。



ドラフト内でのウラン沈殿生成実験
（茨城大と東海大の学生が参加した実験）

茨城大と東海大の大学院生が参加した実験の集合写真

「精製・転換工程コース」では、東工大の大学院生が参加した実験により、集中講義方式で行うように昨年度実施した実験から改良した点（遠心分離を用いるなどにより時間を効率的に利用する方法）を試験し、問題点等が無いか確認した。その結果、昨年度まで時間が足りず、アンモニア添加による沈殿法と過酸化水素添加による沈殿法を異なる班に実施してもらい、データを共有する形で行っていたが、一つの班で２種類の沈殿法を実施できるようにした。また、ろ過と遠心分離を用いることにより沈殿物の性状をより理解できるようになった。問題点としては、二日間にわけて実験を行うと待ち時間が多く、少し間が伸びた感がある。実際に大学院生が事後に提出したレポートの感想にも、待ち時間が多いことが示されている。ただ、この点は集中講義方式に変えると改善されると考えている。実際、茨城大と東海大の大学院生が参加した実験では、集中講義方式で行っており、この問題はなくなっている。大学院生に提出してもらったレポートを見ると、東工大の大学院生が参加した実験も茨城大と東海大の大学院生が参加した実験でも、概ね実験で行ったことを正しく記述していた。つまり、概ね、大学院生に内容を理解してもらったものと考えている。しかしながら、必ずしも全員が現象を正しく記述しているものではなかった。また、放射性計測の評価法についても、誤差まで含めて完全に正しく記述しているものは多くは無かった。この件について、集中講義方式で行った方が、週１回で実施した東工大の大学院生が参加したものよりも正しく記述している大学院生の割合が高かった。レポートで考察に必用な事項については、実験実施中に説明していることを考えると、全体の締め切りを同じにしているため、大学院生がレポートを書くのが、締め切り直前にならないと書かないと推測すると、週１回ずつ行う場合は、集中講義式よりもレポートを書くのが実験を行ってからの時間が長かったため、実験時に説明したことをわすれたものと思われる。つまり、実験終了後できるだけ速やかにレポートを書かせたほうが、大学院生への教育効果が高いことを示している。実験終了後、できるだけ直ぐにレポートを書かせることが重要である。

(2) 濃縮（同位体分離分析）工程コース

濃縮（同位体分離分析）コースでは、原子炉工学研究所で開発したイオン交換吸着材を用いて、ウランの代わりにリチウムを用いた化学濃縮法を実際に大学院生に授業として実験教育を行った。また、表面電離型質量分析計を用いたリチウムの同位体比の測定も行った。実験への参加者は１１名であり、３グループに分け各グループ４人と３人で実施した。また、他大学の学生による実験への参加者は９名であり、２グループに分けたが、本コースにおいては、実験日程の都合で、２グループ同時に行った。

a. 実験内容

実験については、核燃料サイクル工学実験テキストに沿って行った。他大学の学生への実験では、クロマトグラフィ実験における溶離液の濃度を 2 倍にして、リチウムの溶離に要する時間を半分に短縮した。また、各フラクションの採取量を半分にして採取した。その他は、東工大の学生の実験内容と同じ要領で行った。添付テキスト資料参照。

b. 学生実験の実施状況と成果

大学院実験の濃縮コースでは２日間の実験コースとして、初日にリチウムの置換クロマトグラフィ実験及びそのフラクション試料のリチウム濃度測定を行わせ、二日目に表面電離型質量分析計を用いて、ウランの同位体測定を経験させ、また実験試料のリチウム同位体比測定を行わせた。

リチウムの置換クロマトグラフィーでは、全てのグループに於いて問題なく実験が行われた。リチウムの濃度測定には、原子吸光分光光度計 ANA-182 型を用いて、炎光分析法で行わせた。リチウムの標準溶液 0.5, 1, 2, 3, 4, 5ppm の既知濃度の発光強度を測定して検量線を作成させた。次に試料を検量線の濃度範囲になるように希釈させ、その試料の発光強度からリチウム濃度を計算させた。このデータを基にリチウムの置換クロマトグラフィのクロマトグラムを作成させた。その結果は、実験レポートにおいて非常に良い検量線が作成されていることから確認できた。また、置換クロマトグラフィの試料の未知濃度測定においても、クロマトグラムの作成から、非常に良い測定が出来ていると確認できた。

表面電離型質量分析計による同位体比測定では、フラクション試料からクロマトグラムを参考にリチウム同位体比測定用試料を選択する。必要試料数として 10 試料選択させた。その試料の内、学生に濃縮部、中間部（プラトー部）、劣化部から、1 点選び、１試料のみ表面電離型質量分析計でリチウム同位体比を 1 時間以内で 1 試料測定させた。残りの試料の同位体比については、スタッフが予め同位体の質量スペクトルを測定した。この記録されたデータを学生に渡し、学生が測定したデータと一緒にしてリチウム同位体分布を作成させた。クロマトグラム及び同位体分布曲線の作成については、グラフのパターンは良いが、単位の換算が理解できていない。つまり、縦軸のリチウム濃度の表示では、フラクション試料の濃度を ppm で表示し、モル濃度換算していない。また、横軸では、試料番号で表示し、溶離液量に換算しないなど、昨年より少し理解できてないようである。したがって、同位体分離係数の算出および１理論段相当高さ（HETP）の算出についての結果はでき

ないことになる。分離係数を求めさせた計算結果として、正しく得られたグループがなく、回答できなかった。今回の実験レポートから、計算方法を昨年より詳細に黒板で示したが、それでも理解できないようであった。したがって、改善方法としては計算方法の具体的例の模範解答が必要であることが示された。さらに、表計算で、どのように計算するか、何を計算するか、順を追って作成させる表を用意する必要があった。

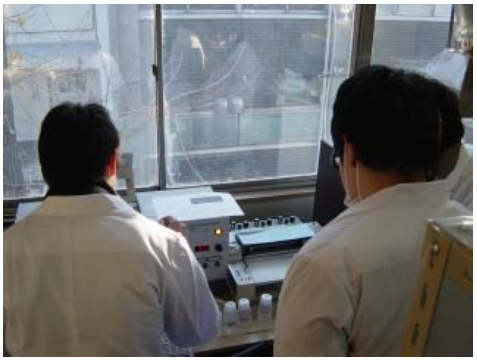
d. 本コースのまとめと課題

本コースでは、原子炉工学研究所で開発したイオン交換吸吸着材を用いた化学濃縮法の実験により、ウラン濃縮工程の理解を図ることができ、同位体分離が化学的に可能であることその基礎である化学的同位体効果を理解させた。また、表面電離型質量分析計によるウラン及びリチウムの同位体比測定により、質量分析装置の基本原理、データ解析法等を理解させた。

昨年及び今年度の学生実験の経験から学生に理解させるべき問題点がわかり、テキストに反映させるようにさらに改善する。今回、リチウムの同位体比測定では、フィラメントの昇温時間を 20 分位で測定温度まで上げ、さらに、30 分で所定のイオンビームになるようにして、1 時間で測定終了出来るようにした。したがって、リチウム同位体比測定を 1 試料から 2 試料測定することが可能となった。また、ウランの同位体比を測定することにより、学生にウランの同位体を質量スペクトルとして実際に記録紙に記録させ、ウラン同位体 234、235 及び 238 の存在およびその量比について実感させることができた。

今後、事前講義 1 日の充実及び実験後に学生がそのデータをグループ内での討論の場にすることも検討したい。

質量分析装置を用いた同位体比測定
東工大の大学院生が参加した教育実験



原子吸光装置によるリチウム濃度測定
茨城大と東海大の大学院生が参加した教育実験

(3)再処理工程コース

本再処理コースでは、本実験を通じ、再処理の基本となる燃料溶解反応の機構、ウランの抽出・分離の原理と価数調整の重要性、ウランの錯体化学、溶媒抽出法の理解を図ることを目指した。具体的には、ウラン酸化物を硝酸水溶液において溶解させる実験及び得られたウラニル硝酸水溶液に他の金属イオンを加えた溶液を用い、抽出・逆抽出試験を行うことを計画した。化学分野の学生だけでなく原子核工学分野でも多種の化学以外を専門とする学生が参加していることから、このような学生に核燃料再処理のような具体的化学操作を行う実験を体験することが広い視野を持った研究者になるために重要であるとの認識から実験操作を考案した。参加した各学生が必ずウラン溶液をハンドリングすることを基本とした。

a. 東工大の大学院生が参加した実験

東工大の大学院生に対する実験において前年度の反省点は実験内容が多いことと、他のコースとウラン濃度測定が重なり待ち時間が多かった。そこで本年度はウラン濃度の測定自体に余裕を持たせるために、ウラン酸化物の溶解実験を写真等により説明し、ウラン標準試料をあらかじめ作成したものを使用することとした。これに伴い、ウラン酸化物の種類で１種類を追加することによって、代表的な酸化物のすべてについて説明することができた。これにより、時間的な余流が生まれ、ウラン溶液の操作について余裕を以て行うことが可能になった。さらに、時間内で実験が終了することが可能となった。参加した退学院生により操作の時間が異なるが、本年度の場合はすべての班において時間内で終了することができた。また基本となる濃度測定及び金属抽出に係る原理の理解度について十分ではなかったとの反省から、テキストの改定と事後の授業等によって図るとしたが、本年度は前年度も配布したが、要点を示した補助テキストを配布し、説明に時間をとって実験前の説明とした。

b. 茨城大と東海大の大学院生が参加した実験

茨城大、東海大の大学院に対する実験は東工大の大学院生が行う時間の半分であったため、先に示した本コースの概念であるウラン溶液を直接本人に操作させることを念頭に置いて、標準ウラン溶液の準備をあらかじめ東工大の学生が作ったものを使用して行った。これは東工大の大学院からのレポートと比較することで採点等の評価に利用可能であるためである。しかしながら、実験操作自体の測定に関しては短縮しなかったため、操作内容が多すぎたと思われる。その他ウラン以外の金属に対する実験は省くことになった。

c. 本コースのまとめ

総合的に学生実験としては予見なく順調に終了したと思われる。レポートに感想を示した学生の意見としては十分な時間をかけた実験をしたかったとの感想が多く見られた。余裕を持った実験としたが、実験時間が不十分との指摘は予想外であった。これは実験当日に実験項目の間が比較的余裕を持たせた関係から、実験内容について熟考が行われ、実験

内容についての考察が行われたことと思われる。十分な時間を指摘した学生は化学分野の出身であったため、実験内容が比較的簡単なことより、測定自体に他の測定項目を求めたことによると思われる。しかし指摘は予想外であったが、このことは想定内のことで、特に東工大の学生実験に関しては測定に比較的余裕のある時間を割り当てることができた結果と考えられる。実験補助に雇い入れたＲＡが実験経験者であったため、測定方法を的確に学生に対して指導することによって、測定の余裕ができ、計画以外の測定方法について考える余裕が生まれたと思われる。液体の容量を測定することは比較的難しい操作であるが、簡便な方法にて容量測定の誤差について考えさせた。本年度はこの操作について評価が比較的良好なものとなった。物理系統の学生が多いせいもあるが、体積を測定することのむずかしさを体験させることになったと考える。この実験は東海大、茨城大学の学生にも行ったが、あまり評価をする者がいなかった。日程的に多くの実験を詰め込みすぎて余裕がないことによると思われる。また説明者にも時間的余裕がなく多くの説明をすることができなかった。今後この点の改良はテキストに反映することでないかと思われる。東工大に関する実験はこれまでの経験から、項目を取捨選択することにより全体的な実験内容がシェイプアップされ、目的の内容について十分な内容となっていると思われる。しかしながら、ウランに関する放射線的な知識の充実に関する実験項目を行う余裕がなく、これからの課題と思われる。東海大学、茨城大学の学生に関する実験に関しては２日分を１日に詰め込んだ結果、散漫な状態になったと思われる。テキストは同じものを配布したが、実験車は予習をし、ノートを作って実験に臨んだものがいた結果、その学生にとっては物足りない内容となったと思われる。このような実験内容であったが、レポートの内容は予定した理解に関し十分に得られた結果となった。被ばく管理が問題となると思われていたが、指導に雇ったＲＡが十分な指導を行った結果、被ばくに関しては問題となることはなく、購入したポケット線量計を使用して本学における被ばく管理を十分に行うことができた。このように東工大以外の学生に対する学生実験は時間の問題で散漫的なものとなったようであるが、実験内容の検討もあるが、これ以上実験内容の削減は不可能と思われ、時間の増加も難しい現状から、事前の授業と実験テキストの改定を行うことで東工大以外の学生に対する実験は充実することが可能と思われる。

(4)廃棄物処理コース

核燃料サイクルからは各種の廃棄物が発生するが、本コースではウラン廃液の処理について、実験廃液を処理する方法を学ぶ。また、「精製・転換コース」では沈殿法によるウラン精製、「再処理コース」では溶媒抽出によるウランの分離・精製を学ぶことから、本コースではこれらの方法と対比することができるようにイオン交換法による分離・精製法を学ぶ。本コースを通じて、廃液処理の重要さと放射性廃棄物の処理法、特に核種分離法の重要性の理解を図る。

実際の大学院生実験では、模擬的にウラン廃溶液を作成し、その模擬廃溶液を用いた分離生成試験を行った。模擬廃溶液に含まれる元素としてはウランに以外に核分裂生成物に含まれる元素であるアルカリ金属のセシウム、アルカリ土類元素のストロンチウム、希土類元素のユウロピウムを溶解させた。この模擬廃液を用い、イオン交換法によってウランを分離・精製する大学院生実験を実施することにより、廃棄物処理法、核種分離、イオン交換分離法の基礎を理解させた。

a. 実験内容

イオン交換による分離はウラン廃液の処理には、陰イオン交換樹脂を用いる。今回は、Bio Rad 社製の 4 級アンモニウム型陰イオン交換樹脂 AG1X8 を用いた。AG1X8 は最も一般的な陰イオン交換樹脂であり、企業や研究所等ではこのイオン交換樹脂を使う確率が高い。図 4.1.1(4)-1 に AG1X8 の化学構造式を示す。

陰イオン交換樹脂による金属イオンの吸着は、溶液中の金属イオン全体が負の電荷をも

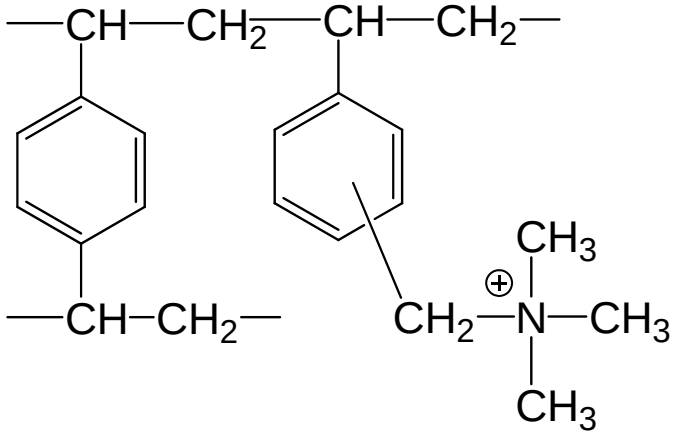


図 4.1.1(4)-1　陰イオン交換樹脂の構造式

つまで溶液中の陰イオンと錯形成し、その錯イオンが陰イオン交換と吸着するのがメカニズムであり、錯形成の状態が金属イオン種により異なるのが分離の機構である。陰イオン交換に用いる酸の種類はどのように分離するか、またもともとの組成が何であるのかにより異なるが、純粋に吸着の大きさなどから考えると塩酸溶液系で用いるのが適していることが分かっている。したがって、今回の大学院生を対象とした学生実験においても陰イオン交換樹脂と塩酸溶液の組み合わせで行った。陰イオン交換樹脂への吸着特性については分配係数を用いて評価される。分配係数は樹脂層と溶液相の単位体積あたりのイオン量で定義される。この定義により、分配係数が大きくなる条件では樹脂相に分配されるイオン

の割合が高いことを意味し、塩酸溶液中での 4 級アンモニウム型陰イオン交換樹脂に吸着するイオン量が多いことを意味している。

図 4.1.1(4)-2 に、AG1X8 に代表される 4 級アンモニウム型陰イオン交換樹脂に対する各元素の塩酸溶液中の分配係数を示す。

この図を見ると、ウランは塩酸濃度の濃い条件で陰イオン交換樹脂に多く吸着すること

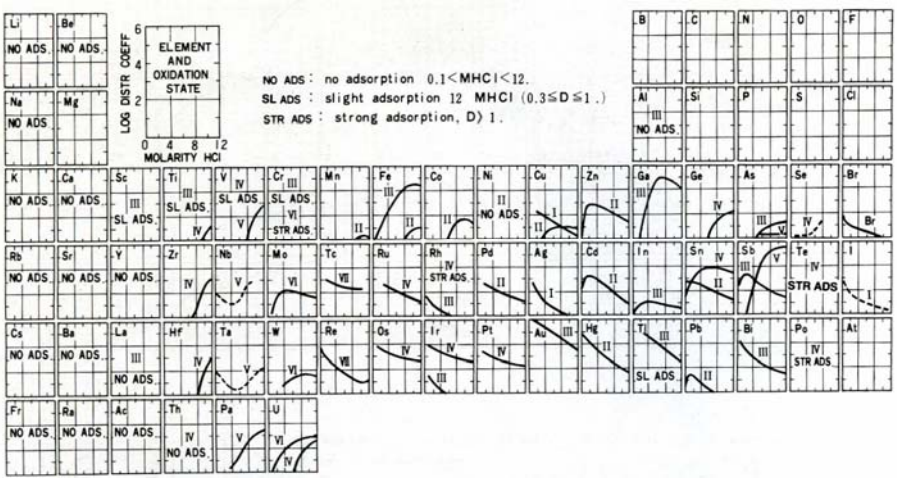


図 4.1.1(4)-2　陰イオン交換樹脂に対する各元素の塩酸溶液の分配係

がわかる。分配係数を比較することによりどの条件でどの元素が分離可能となるかが検討でき、大学院の学生にはレポート中の課題として、白金族元素であるパラジウムをウランと分離する方法について検討させた。学生実験としてはウランに核分裂生成物の代表としてアルカリ金属のセシウム、アルカリ土類元素のストロンチウム、希土類元素のユウロピウムを加えた模擬廃液を用いてウランの精製試験を行った。アルカリ金属、アルカリ土類元素、希土類元素は陰イオン交換樹脂には基本的には吸着しないので、ウランとの分離が比較的簡単であるので選択した。これらの樹脂はムロマックミニカラム L に樹脂高さ約 5cm で充填した。充填は純水で樹脂を懸濁させて行なった。この樹脂を充填したカラムに 6M もしくは 9M の塩酸に溶けた模擬廃液を着点し、溶離展開してウランを吸着させた状態で核分裂生成物の模擬物質を洗い流し、最終的に薄い酸でウランを洗い流すことによりウランが精製可能であることを確認させた。

b. 学生実験の実施状況と成果

実験の参加者は２０名（東工大１１名，茨城大６名，東海大３名)、５グループに分けて実験を行った。実験は東工大学生については２日間（のべ 360 分)、茨城大と東海大の学生については１日（のべ 180 分）で実施した。東工大学生に配布した資料を添付資料 1 とし、茨城大と東海大の学生に配布した資料を添付資料 2 とした。

両者の記載内容についてはほぼ同様であるが、茨城大と東海大の学生の実験内容については、東工大の学生とは専攻や履修科目が異なることや実施時間の制限があったため、東工大学生対象の実験内容と比べて取扱う試料数を約半分とした。また、レポート作成について、茨城大と東海大の学生についてはウラン量に関する定量的な評価を省略し、イオン交換法に関する定性的な理解を図ること最重要課題とした代わりに、定量的な評価を行う

ために必要な実験操作を考察させた。

実際の実験操作において、塩酸溶液の切り替え等において分配係数に基づき、教員が指示して行った。バッチ法による分離実験では、樹脂に対するウラン吸着について目視による確認が困難であったため､蛍光X線分析を行うことにより分離ができたことを確認した。大学院生はイオン交換で核種が分離でき、ウラン精製が可能であること自身は実感できたようではあった。カラムを用いた分離実験においては、実際に目視でウランの吸着帯を確認でき､また濃い塩酸溶液(9N)で溶離展開しても吸着帯の移動がほとんど無いことも目で確認できた。またウランが樹脂に吸着している状態について目視で確認できたことは、学生にとって面白かったようである。

実験結果より、模擬廃液に、ウラン、セシウム、ストロンチウム、ユウロピウムが含まれていることを蛍光 X 線分析結果より理解し、イオン交換法によってウランと他元素が分離可能となることを理解させた。実際に学生のレポートを見てもイオン交換による核種分離が理解でき、また実際にウランの回収に役立つこと、得られたウランの純度が高いことなどが理解できていることが確認できた。

c. 本コースのまとめと課題

陰イオン交換樹脂を用いて他の元素が混合した模擬廃液資料からウランのみを回収することにより、ウランの精製、核種分離の基礎、イオン交換の基礎について大学院生に理解させることができた。大学院生の理解度については提出させたレポートで確認し、概ね正しい解答を得ており、ほぼ正しく理解をしていると評価した。考察内容については、各人工夫した回答を行っていることもあり、互いに議論をすることにより理解度が高まる可能性があり、今後は、実験後に学生たちと集まって議論する時間を設けるようにしたいと考えている。今回の大学院生実験については理解度と言う点では申し分ないと考えているが、より大学院生の理解度を高めるとともに教育効果を高くするため、定量的な評価にも重点を置いた実験操作や課題内容となるように、今後のカリキュラムを検討する。

今年度はスケジュール等の都合により、東工大学生対象の実験と茨城大・東海大生を対象とした実験を別々に実施した。本コースの実施にあたり、東工大学生は 360 分の実験実施時間があったのに対し、茨城大・東海大学生は 180 分という制約があったが、取扱う試料数を約半数にすることにより時間短縮を図った。今年度のプログラムにおいて、茨城大・東海大学生については定量的な評価を行うところまで至らなかったが、実施内容の再検討することにより短時間の実験でも東工大学生と同等の実験を実施できるようにしたい。

東工大生を対象にした教育実験の実施風景

4.1.2 放射化学実験

2011 年 2 月 14 日（月）、15 日（火）、16 日（水）の 3 日間、東海大学湘南校舎 17 号館放射線施設において実施した。実施スケジュールを表 4.1.2-1 に示す。また、実験テキストを作成し参加学生（茨城大 6 名、東工大 3 名）と教員等に配布した（添付資料 3)。

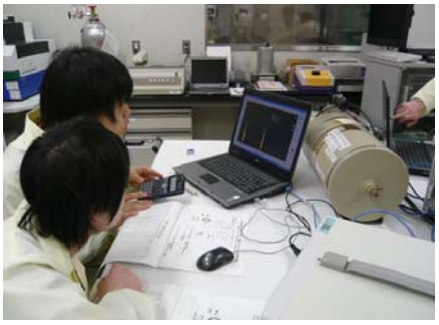
第 1 日目（2 月 14 日）は、教育訓練と放射線施設の見学及び設備の説明を行った。具体的には、実験室、貯蔵設備、廃棄処理設備、低温室等を見学し、設備として液体シンチレーション検出器等の各種放射線検出器について概説した。また、施設見学後に放射化学実験の概要説明を行い、実際の手順を確認するためのコールド試験を行った。

第 2 日目（2 月 15 日）の午前に、放射線計測の基礎を習得するため、放射線計測実験①として GM 計数装置の取り扱いに関する実験を行った。実験テーマとして、GM 計数管のプラトー特性の評価と二線源法による分解時間の測定を行った。午後は、参加学生 9 名を A 班（4 名）と B 班（5 名）の 2 グループに分け、A 班は放射化学実験を B 班は放射線計測実験②を実施した。放射化学実験では、トレーサレベルの混合核種の分離手法を習得するため、沈殿分離法による ^{90}Sr と ^{137}Cs の核種分離を行った。^{90}Sr の分析には GM 計数装置を、^{137}Cs の分析には NaI シンチレーション検出器と Hp-Ge 半導体検出器を用いた。放射線計測実験②では、種々のγ線源を使用して Hp-Ge 半導体検出器の取り扱いに関する実験を行った。

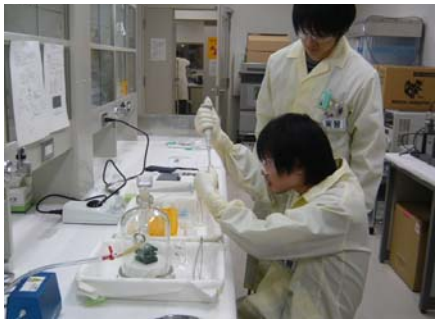
第 3 日目（2 月 16 日）の午前は、2 つのグループを入れ替え、A 班は放射線計測実験②を、B 班は放射化学実験を実施した。午後は、実験データの取り扱いについて解説した。

放射線計測実験①の様子 1
（GM 計数管のプラトー特性）

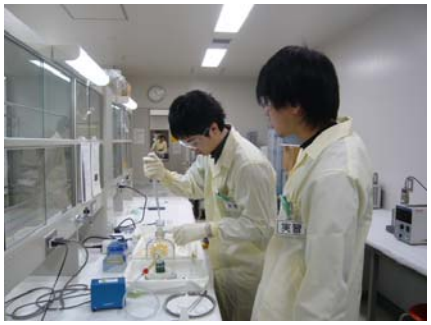
放射線計測実験①の様子 2
（二線源法による分解時間の測定）



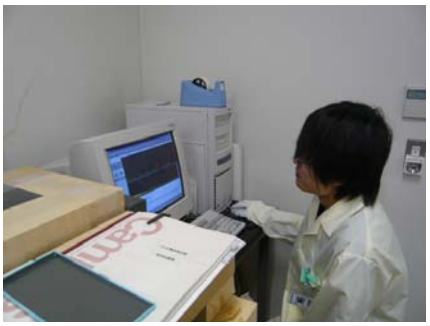
放射線計測実験②の様子
（Hp-Ge 半導体検出器の取り扱い）



放射化学実験の様子 1
（放射性溶液の分取）



放射化学実験の様子 2
（沈殿分離及び洗浄回数調査）



放射化学実験の様子 3
（Hp-Ge 半導体検出器による ^{137}Cs の分析）

表 4.1.2-1　放射化学実験及び実践的原子力人材育成講義コースのスケジュール

日程	時　間	内　　容
2 月 14 日（月）	13:15	集合・開会（東海大学湘南校舎 17 号館研修室 2）
	13:30～14:30	講義「放射線管理の実際」 講師：阿部正明 氏（株式会社　千代田テクノル）
		休憩（10 分）
	14:40～16:40	教育訓練
		休憩（10 分）
	16:50～18:30	放射化学実験の説明と操作確認　終了後解散
2 月 15 日（火）	9:15	集合（東海大学湘南校舎 17 号館研修室 2）
	9:30～12:30	放射線計測実験①　GM 計数装置の取り扱い
	12:30～13:30	昼食
	13:30～17:00	A 班：放射化学実験 B 班：放射線計測実験② Hp-Ge 半導体検出器の取り扱い　終了後解散
2 月 16 日（水）	9:15	集合（東海大学湘南校舎 17 号館研修室 2）
	9:30～12:30	A 班：放射線計測実験② Hp-Ge 半導体検出器の取り扱い B 班：放射化学実験
	12:30～13:30	昼食
	13:30～15:00	実験のまとめ
	15:00～16:00	講義「原子力産業における放射化学技術の活用」 講師：水口浩司 氏（株式会社　東芝）
	16:00	閉会・解散

4.2 実践的原子力人材育成講義コース

東海大学湘南校舎 17 号館研修室 2 において、「放射線管理の実際」と「原子力産業における放射化学技術の活用」について下記の日程で講義を行った（表 4.1.2-1 参照）。2 名の講師には、無償で 1 時間の講義をしていただいた。

講義「放射線管理の実際」
日時：2011 年 2 月 14 日（月）13:30～14:30
講師：阿部 正明 氏（株式会社　千代田テクノル）
概要：放射線の歴史や放射線利用についての説明に始まり、放射線が及ぼす人体への影響について説明があった。また、放射線管理の上で重要となる関係法令や放射線防護の体系について解説された。さらに、医療施設、研究施設、原子力施設それぞれの放射線管理の実際について紹介があった。（配布資料あり:添付資料 4）

講義「原子力産業における放射化学技術の活用」
日時：2011 年 2 月 16 日（水）15:00～16:00
講師：水口 浩司 氏（株式会社　東芝）
概要：放射化学技術の活用の一例として、再処理技術について説明があった。燃料サイクルについての説明に始まり、使用済み燃料の再処理について解説があり、最近の技術開発として高速炉燃料サイクルについて紹介があった。

実践的原子力人材育成講義コースの様子
「原子力産業における放射化学技術の活用」

4.3 実践的原子力人材育成研修コース

本コースでは、実験コース、講義コースの教育で得られた知識が、実際に現場でどのように活用されているかを実際に経験し、知識を実体験として自分のものにするために、茨城県周辺の数箇所の原子力関連施設での研修見学を実施した。実際のスケジュールと実施場所を表 4.3.1 に示す。参加学生は、東京工業大学１０名、東海大学３名、茨城大学５名の合計１８名であった。

表 4.3.1 見学研修スケジュール

日時		実施場所
2011 年 1 月 27 日	午後	日本原子力研究開発機構
2011 年 1 月 28 日	午前	日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社
	午後	三菱原子燃料株式会社

4.3.1 日本原子力研究開発機構

茨城県東海村にある日本原子力研究開発機構の核燃料サイクル工学研究所において、実験コースで実施した核燃料サイクルの技術が実際の現場でどのように活用されているのかを研修した。研修場所は、先進リサイクル関連施設およびプルトニウム施設である。核燃料サイクルや MOX 燃料製造プロセスの現場を体験し、参加学生はその重要性を再確認したようである。また、大学にくらべ放射線管理やセキュリティのレベルが高く、とくにプルトニウムを扱う施設において、あらためて放射性物質の取り扱いの難しさを体感したようである。

4.3.2 日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社

日立市にある日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社の日立事業所臨海工場において原子力機器の製造工程に関する見学を行った。シュラウド、上部格子板、気水分離器、制御棒、燃料チャンネルボックスなど実際の原子力機器の製造過程を体験することができた。特に、大型の製缶機器は他では目にすることが出来ない貴重なものであり、実際にそれらを目の当たりにすることにより、実際のプラントのスケールを実感することができた。

図 4.3.1　人材育成研修コース参加者集合写真 1（日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社）

4.3.3 三菱原子燃料株式会社

茨城県東海村にある三菱原子燃料株式会社において、原子燃料の製造工程の見学研修を行った。三菱原子燃料株式会社では、燃料製造工程のうち、再転換工程、ペレット成型工程、燃料棒組み立て工程、燃料集合体組立工程を担当しており、特に再転換工程は、実験コースで実施した実験と関係が深く、教育で得られた知識が実際に現場でどのように活用されているかを体感することができた。

図 4.3.2　人材育成研修コース参加者集合写真 2（三菱原子燃料株式会社）

4.4 大学間連合の打合せ

大学間の連携のため、打合せを事業開始直後と事業終了直前の２回実施した。

以下に議事録を示す。

第１回打合せ議事録

平成　22 年　11 月　22 日

１．場所：東京工業大学 原子炉工学研究所 二号館６F 会議室
２．日時：平成２２年　１１月２２日　午前１０：００～午前１２：００
３．議題：原子力人材育成プログラムに係る学生実験等の日程調整などの打ち合わせ。
４．会議参加者：
　関東康祐　教授（茨城大)、田中伸厚　教授（茨城大)、浅沼徳子　准教授（東海大）
　池田泰久　教授（東工大)、鈴木達也 准教授（東工大)、劉醇一　助教（東工大)、
　原田雅幸　助教（東工大)、野村雅夫　助教（東工大)、加藤泰幸（事務補佐員）
５．内容：日程確認、今年度実施することの確認
1) 今年度の実施事項の確認とスケジュールの調整
・燃料サイクル実験（東工大）
　従事者登録を行うことを確認した。
　実験内容の確認した
　実施時期を１月１１日～１３日（２泊３日）とした。
　単位認定等について
　　東海大では単位認定　参加予定人数(東海大　教員１、学生３)
　　茨城大では単位認定　参加予定人数(茨城大１２月３日までに)
・放射化学実験、講義（東海大）
　実施時期を２月１４日～１６日（２泊３日）とした。
　履修者登録を行う。
　単位認定等について
　　東工大では出席のみ単位なし
　　茨城大では単位認定
　　参加人数は１２月１７日まで決定し、東海大に報告
・原子力関連施設研修（茨城大）
　実施時期を１月２４～２８日（１泊２日）とした。
　日立駅（集合場所、宿泊地、解散場所）
　２～３の施設とし、施設との連絡バス手配は茨城大が行う。
　見学者リスト（ID カード;公的証明書、免許証、保険証など　注：留学生の可不可確認）を作成する。
　単位認定について
　　東工大　単位あり（学生実験第２履修者）参加予定人数（教員 2、学生 11）
　　東海大　単位なし（M1）　参加予定人数（教員 1、　学生　現時点で不明）

2)宿泊手配　すべて東工大手配
（東工大→茨城大、東海大→茨城大、茨城大→東工大、茨城大→東海大）

3)保険について（学生実験、その他の学生の保険について確認　）

4)大学間協定について（　課題抽出、各大学における手続きの把握　）

5)次回打ち合わせ　平成１２年２月２４日木曜日　１３：00～１５：００

以上

第２回打合せ議事録

平成　23 年　2 月　24 日

１．場所：東京工業大学 原子炉工学研究所 一号館 1F 会議室
２．日時：平成２３年　２月２４日　午後１：３０～午後３：３０
３．議題：平成２２年度原子力人材育成プログラムの総括と今後の計画などの打ち合わせ。
４．会議参加者：
　関東康祐　教授（茨城大）、田中伸厚　教授（茨城大）、浅沼徳子　准教授（東海大）
　伊藤　敦　教授（東海大）、池田泰久　教授（東工大）、鈴木達也 准教授（東工大）、
　劉醇一　助教（東工大）、野村雅夫　助教（東工大）、
　加藤泰幸（事務補佐員）

５．内容：
・第１回議事録の内容確認を行った。
・各大学担当分についての意見、実施内容の自己評価を行った。
・来年度以降のことについて議論した。
　今の形で同様のプロジェクト（実験内容など）の継続したいことを確認。
　実施時期は、できれば８月か９月とし、集中講義方式にしたい。

以上

第１回目では、平成 22 年度に実施することのスケジュール調整を中心に行った。第 2 回目の打合せでは、平成 22 年度の実施事項についての自己評価や学生のアンケート結果を元に議論し、来年度以降のことについて議論した。評価については、基本的には本事業が学生達にとって有意義なものであったか、真に学生にとって意味があり、ためになるものであったかが議論になった。学生のアンケートの結果、大学の単位互換については学生は望んでおらず、所属する大学の単位であることを望んでいることがわかった。また、単位がもらえることは当たり前ではあるが、学生にとって最も重要な事項であることを確認した。実施した内容については、全ての学生が有意義に感じていることを確認した。そのことから、各大学で正規の授業として単位化させることが重要であり、内容としては本年度の内容で良いということを確認した。

５．まとめ

東工大、茨城大、東海大の３大学連携して、「実践的教育実験コース」、「実践的原子力人材育成講義コース」、「実践的原子力人材育成研修コース」の３コースから成る核燃料サイクルの実践的人材育成カリキュラムを構築した。また、各大学でこれらコースを全てではないが、正規の講義として取り込むことに成功した。したがって、本事業の実施により、３大学の大学院生に今まで実施が困難であった核燃料サイクルに係る教育プログラムを実施することができ、将来原子力分野で活躍するであろう大学院生等に実践的な教育が行われたと結論付ける。なお、各大学から本事業で実施した教育プログラムに参加した大学院生からも実際に経験が困難であった核燃料物質を実際に操作することが出来る実験等がプログラムに含まれていることに対して評価が高いものであった。反省点としては、本プログラムの実施において担当教員の負荷が通常の大学で実施するプログラムよりも高く、担当教員の負荷軽減も考慮する必用があることが上げられた。

来年度以降は、本事業で実施される教育プログラムに参加する大学院生にとってよりメリットがあるようにするため、ホン事業で実施する教育プルグラム全てが単位と関連付けられるようにする。また、より教育効果を高めるためと教員の負担を低減するために連携して行う実験に係るプログラムについては集中講義方式にして、実施時期についても他の講義と重ならない時期（8 月や 9 月など）に実施することとした。

異なる大学間で連携を取りながら事業を実施することは簡単なことではなく、特に共同利用施設に認定されていない大学の放射線利用施設や核燃料使用施設を他大学に教育目的で利用させることは難しく、しかも、国立大学と私立大学が混在している状況ではなおさらである。そのような中で、本事業では実際にそれら施設を利用した教育プログラムを実施することができた。これは非常に評価できることである。また、実際に実施した３つのコースも参加した大学院生にとっても意義があるものであったことも評価できる。

添付１　「原子核工学実験第２　核燃料サイクル工学実験テキスト」

原子核工学実験第 2
核燃料サイクル工学実験

東京工業大学大学院

理工学研究科

原子核工学専攻

本テキストは国立大学法人東京工業大学が経済産業省「平成２２年度原子力人材育成プログラム（原子力総合技術プログラム)」の委託契約に基づき行った事業の一部である。

平成 22 年 11 月

目次

1.　精製転換コース　・・・

1. 精製転換コース

1.1 本コースの目的

精製・転換コースでは沈殿法を通して核燃料サイクルにおけるフロントエンドでのウラン精製法を学ぶのを目的とする。

1.2 ウランの精製・転換について

ウランは鉱石として取り出された後、硫酸で溶かし、水酸化ナトリウム、アンモニア水、もしくは過酸化水素を加えて沈殿させて精製を行なう。こうして作られた沈殿物を取り出したものがイエローケーキと呼ばれるものである。このイエローケーキを熱処理して酸化物(3 酸化ウラン：UO_3)に転換する。更に、3 酸化ウランを UF_6 に転換し、同位体濃縮を行なう。同位体濃縮を行なった UF_6 を再転換し、ウランペレット(UO_2)を作るわけであるが、この再転換過程においても溶液に沈殿法により精製を行なう。また、沈殿によるウランの精製は様々な状況で用いられ、状況に応じてアンモニア水(あるいはアンモニアガスの吹き込み)、過酸化水素によって実施される。

・事前レポート課題：ウラニル(UO_2^{2+})が解けている溶液に水酸化ナトリウム溶液を加えると重ウラン酸ナトリウム($Na_2U_2O_7$)、アンモニア水を加えると重ウラン酸アンモニウム($(NH_4)_2U_2O_7$)、過酸化水素を加えると過酸化ウラン水和物($UO_4・2H_2O$)を得ることができる。硝酸ウラニル($UO_2(NO_4)_2$)の水溶液を例に取り、重ウラン酸アンモニウムの生成と過酸化ウラン水和物の生成の化学反応式を示しなさい。

1.3 実験法

本大学院生実験では、予め硝酸ウラニルを溶かした溶液を沈殿して、回収率を確認する実験と不純物を加えた硝酸ウラニル溶液を沈殿法を用いてウランを精製する方法を試みる。本実験では、重ウラン酸アンモニウム沈殿報と過酸化水素沈殿法の 2 法を行う。

1.3.1 実験手順

沈殿確認実験

(1) 試料 A にはウラン溶液(硝酸ウラニル水溶液)が入っている。その中から 2ml 取り出し、サンプル瓶に移す。その操作を 2 回行う。つまり、サンプル瓶に 2ml 入った試料を二つ作成する。それら試料をそれぞれ A1-1, A1-2 とする。

(2) 試料 A から 50μl 試料を取り、カーボン箔の上で蒸発乾固させて測定用試料とする。(A 測定試料)

(3) 測定用試料の α 線測定を行なう。測定時間は 7,200 秒(2 時間)とする。

Q1. 検出効率 50%として、2ml 中に含まれるウランの量(mol)を計算してください。

α線測定はU-238で行ないますが、同位体比を考慮して計算してください。（ウランの同位体比は天然同位体比とする）

(4) 試料A1-1にアンモニア水(28%, 比重0.9)を0.5ml加えて、沈殿を生成させる。
少し暖めて、沈殿が十分にできるまで熟成させる。

Q.2 Q1で求められたウランの量から、沈殿反応に必要なアンモニア濃度の量(mol)を見積もり、化学量論的に見て、今回加えたアンモニア水の量を議論してください。

(5) 試料A1-2に過酸化水素水(30%, 比重1.1)を0.5ml加えて、沈殿を生成させる。
少し暖めて、沈殿が十分にできるまで熟成させる。

Q3. Q1で求められたウランの量から、沈殿反応に必要な過酸化濃度の量(mol)を見積もり、化学量論的に見て、今回加えた過酸化水素水の量を議論してください。

(6) アンモニア水で沈殿させた試料の上澄み液を吸引ろ過し、ろ過した試料をA2-1とし、サンプル瓶に移す。

(7) 試料A2-1から50μl試料を取り、カーボン箔の上で蒸発乾固させて測定用試料とする。
(A2-1測定試料)

(8) 過酸化水素法で沈殿を生成させた試料の上澄み液を吸引ろ過し、ろ過した試料をA2-2とし、サンプル瓶に移す。

(9) 試料A2-2から50μl試料を取り、カーボン箔の上で蒸発乾固させて測定用試料とする。
(A2-2測定試料)

(10) 蛍光X線装置を用いてウランの沈殿生成率を評価する。

・カーボン箔を蛍光X線装置に入れて、バックグラウンドの測定を行なう。
・A測定試料を蛍光X線装置に入れて、ウランの測定を行なう。
・A2-1測定試料を蛍光X線装置に入れて、ウランの測定を行なう。
・A2-2測定試料を蛍光X線装置に入れて、ウランの測定を行なう。

（上記の順番は変わってもかまわない。）

測定は50keVのX線を用いる。測定時間とX線管の電流値は固定する。
（測定時間は正味の測定時間を示すこと）

測定時間＿＿＿＿＿＿s

電流値＿＿＿＿＿＿μA

(11) A2-1 測定試料のα線測定を行なう。測定条件は(3)と同じ。

Q4. 沈殿生成率を評価し、Q2, Q3 の議論等を踏まえ、その率について議論してください。

沈殿生成率について、重ウラン酸アンモニウム沈殿法と過酸化水素沈殿法を比較して議論してください。

また、アンモニウム沈殿法については２種類の測定法を行っているが、この測定法による影響があるか否か、また、その理由について議論してください。

沈殿法による精製試験

(1) 試料 B にはウラン溶液と未知の元素が入っている。その中から 2ml 取り出し、サンプル瓶に移す。その操作を２回行う。つまり、サンプル瓶に 2ml 入った試料を二つ作成する。それら試料をそれぞれ B1-1, B1-2 とする。

(2) 試料 B1-1 にアンモニア水(28%, 比重 0.9)を 0.5ml 加えて、沈殿を生成させる。

(3) 試料 B1-2 に過酸化水素水(30%, 比重 1.1)を 0.5ml 加えて、沈殿を生成させる。

(4) 沈殿を生成させた試料の上澄み液を吸引ろ過し、ろ過した試料はアンモニアを用いたものを B2-1 とし、過酸化水素水を用いたものを B2-2 とし、それぞれをサンプル瓶に移す。

(5) 試料 B、B2-1 および B2-2 から 50μl 試料を取り、蛍光 X 線用試料皿にとり、蒸発乾固させてそれぞれ測定用試料を作成する。(B 測定試料、B2-1 測定試料、B2-2 測定試料)

(6) 蛍光 X 線を用いた試料測定を行なう。

Q5. B 測定試料を用いた結果より、未知元素が何か評価してください。

Q6. ウランは沈殿として回収されます。ウランの回収率を評価してください。

Q7. この実験では U と共に様々な元素が混入している系から、それら不純物を取り除き、製品として純度の高いウランを求めるためのものであるが、ウランがどれだけ精製されたかを評価するために次式で表される除染係数を評価してください。

除染係数(=(試料 B 溶液中の未知元素量/溶液中のウラン量)

/(沈殿中の未知元素量/沈殿中ウラン量))

なお、複数の元素（Q5 で評価した未知元素）があるときは、その各々の元素について評価してください。特に、重ウラン酸アンモニウム法で行った精製と過酸化水素沈殿法で行った精製とで違いがあるか、評価してください。

レポート：事前レポートに加え、上記 Q1-Q7 の問題に答えなさい。
レポートには目的、実験方法を必ず記載すること。
実験で用いた測定機器について、原理を調べて記入すること。
実験データは誤差も含めて議論すること。
最後に実験の感想も記述してください。

注意）誤差の評価法については「5.補足」に記述してあるので、参考にすること

---

2. 濃縮（同位体分離分析）工程コース

2.1 目的

イオン交換法による濃縮法の原理，ウラン同位体の種類と性質，質量分析計の原理について理解を図る。

2.2　はじめに

同位体は極めて似通った化学的性質を持つことから、その分離は極めて難しい。同位体分離法は個別分離法と統計的分離法に分けられ、電磁分離法やレーザー分離法などは個別分離法である。一方、統計的分離法には化学交換法、分別蒸留法、気体拡散法、遠心分離法、熱拡散法、電解法などがある。目的元素に応じて様々な方法がある。電磁分離法は 1913 年に Thomson によってネオンのビームが電磁場を通過し、写真乾板に Ne-20 と Ne-22 の飛跡が記録されたことから、その分離の可能性が示された。これは同時に安定同位体の発見であり、質量分析計の原理でもある。電磁分離法の装置では分離される量が少ないが多くの元素に適用されることから、研究のために用いる個別の同位体の生産に用いられる。Aston は 1920 年にネオンを多孔質の粘土の管に通してその同位体を分離した。この方法がガス拡散法の始まりである。熱拡散法による同位体の分離に関しては、熱拡散効果の存在が 1911 年に Enskog によって理論的に予測され、その可能性が古くから知られていた。1939 年に Clusius と Dickel が熱拡散塔を開発して、Cl-35 と Cl-37 をそれぞれ 99%まで濃縮した。しかし、熱拡散法の同位体分離は小規模の分離には良いが、エネルギー消費が大きく、効率が悪いことから大規模の分離には適さない。

イオン交換法はイオン交換体を用いる方法で、化学交換法の一種である。化学交換法は溶液内に共存する種々の化学種あるいは化合物間の平衡交換反応の同位体効果に基づく方法である。即ち、同位体によって化学反応速度定数や化学反応平衡定数が僅かに異なり、この差異が同位体効果である。この化学反応平衡定数の同位体効果が同位体分離に利用される。その同位体分離法は 1938 年に Taylor と Urey がリチウム及びカリウム同位体を濃縮して以来多くの研究が成されている。

ウランのイオン交換法による同位体分離法には、(1)4 価ウランの錯形成反応、(2)6 価ウランの錯形成反応、(3)4 価－6 価ウランの電子交換反応、を用いた方法があり、この分離係数(1)は 1.00006、(2)は 1.0002、(3)は 1.001 である。(3)の電子交換反応系においては旭化成において Super 法ウラン濃縮が準工業規模まで開発された。

濃縮（同位体分離分析）工程コースでは、ウラン濃縮法の一つであるイオン交換体等の吸着体を用いた化学濃縮法の実験及び表面電離型質量分析計による天然に存在するウランの同位体測定やリチウム濃縮（同位体分離）実験で得たリチウムの同位体比測定を行う。

2.3　イオン交換の同位体効果

イオン交換法はイオン交換体を用いる方法で、化学交換法の一種である。化学交換法は溶液内に共存する種々の化学種あるいは化合物間の平衡交換反応の同位体効果に基づく方法である。即ち、同位体によって化学反応速度定数や化学反応平衡定数が僅かに異なり、この差異が同位体効果である。この化学反応平衡定数の同位体効果が同位体分離に利用される。同位体 A、B が、反応基 X、Y と結合した 2 種類の化学種が共存している場合、化学種間に次の反応が成立つ。

$$AX + BY \rightleftarrows BX + AY \qquad (1)$$

この(1)式の同位体交換反応の平衡定数 K が 1 より少しずれる。この僅かの差異を ε_o で表示し、$K = 1 + \varepsilon_o$ となる。リチウム、ホウ素、窒素等の元素における同位体の ε_o は、0.01～0.06 であり、ウランの場合、6 価ウランの錯形成反応系で 0.00002 である。このとき 2 相に化学種が分配するようにして、片方の相に一方の化学種を選択的に取り込むようにする。つまり、イオン交換体と溶液の 2 相を考え、この両相の化学種間の同位体平衡反応を利用して同位体分離をする。

イオン交換を利用した最初のリチウム同位体分離は Taylor と Urey の実験である。無機イオン交換体であるゼオライトをステンレス製のパイプに詰め、塩化リチウムを流してリチウムの同位体分離に成功した。その後、Lee, Begun, Drury 等は、有機陽イオン交換樹脂 Dowex 50 を用いて、溶離クロマトグラフィーで一段の分離係数を実測した。

分離係数 ε は $\varepsilon = \Sigma f_i(R_i - R_o)/QR_o(1-R_o)$ で求められる。

ここで、Q はイオン交換全容量、R_o は feed の Li 同位体のモルフラクションで、R_i は各フラクションの Li 同位体のモルフラクション、f_i は各フラクションのリチウム量である。

1 理論段相当高さ（HETP）は、

$HETP = \varepsilon/k + 1/k^2L$ で求められる。

ここで、ε は上記に示す分離係数であり、k は右**図 1** に示すような傾きを表し、L はクロマトグラフィーの泳動距離で単位は cm である。r はフラクションのリチウム同位体比であり、r_o は feed のリチウム同位体比を表わす。

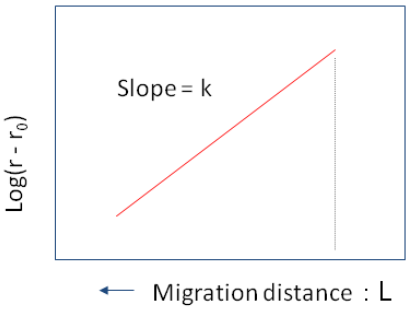


図 1　同位体濃縮部の傾き k

2.4　同位体比分析

一般に同位体比の測定は、質量分析装置を用いる質量分析法で行われる。質量分析装置とは原子、分子等をイオン化した後、質量によって各々分離してその量を個々に測定する装置である。したがって質量分析装置は原子、分子をイオン化して取り出すイオン源部、このイオンを質量分離する分析部、及びこれらを検出する検出部の 3 部より成り立ってい

る。イオン化及び質量分離にはいろいろな方法があり、たとえばイオン化の方法によって分類すると電子衝撃型、化学イオン化型、表面電離型、高周波放電型、イオン衝撃型、電界電離型、光電離型、高周波誘導プラズマ型などがある。また質量分離の方法によって分類すると磁場型、四重極型、飛行時間型、イオンサイクロトロン型があり、このうち磁場型と四重極型が現在広く用いられている。イオンの捕集器としてはファラデーカップまたは二次電子増倍管が用いられている。これらの後段に負帰還直流増幅器を接続して微小電流を検出する。イオン電流 10^{-14}A 以上の微小電流であればイオンの捕集器としてファラデーカップのみでイオン電流を精度よく測定できるが、10^{-14}A 以下の極微小電流のときは二次電子増倍管を使用しなければならない。

同位体比の測定は前述したように試料をイオン化してそのイオン量を計測することによっておこなわれる。この場合分析試料の絶対値（真値）と観測される測定値の間の関係を慎重に較正しておかなければならない。それはたとえば、用いる測定装置の違いによって異なる測定値を与えることがあるからである。そこで同位体比の測定には一般に標準物質の同位体比と試料の同位体比を比較する相対比法が用いられている。また同じ装置であっても検出器の違いによって異なることがあり、これらは標準試料あるいは同じ試料を用いてあらかじめ補正係数を定めておく必要がある。

同位体比を表示する場合、しばしば試料の同位体比を標準物質の同位体比からの偏差として千分率（単位は‰、パーミル）で表すことがある。偏差（δ）は次の式で定義される。

$$\delta = \left(\frac{R_{Sample}}{R_{Standard}} - 1 \right) \times 1000$$

ここで、R_{Sample} は試料の同位体比、$R_{Standard}$ は標準物質の同位体比であり、リチウム同位体比の場合には R は $^{7}Li/^{6}Li$ を示し、δ は $\delta^{7}Li$ を示す。標準物質としては、アメリカの標準技術研究所(NIST)の炭酸リチウム（LSVEC-Li)や EU の共同研究センター標準物質計測研究所(IRMM)の炭酸リチウム（IRMM-016a）を用いる。試料のリチウム同位体比が標準試料のリチウム同位体比に一致したとき $\delta^{7}Li = 0$ ‰ である。このように同位体比を表すときはこの δ 値、あるいは NIST 等の標準炭酸リチウムのリチウム同位体比に規格化すると、絶対値で表示されることになる。

2.5 リチウム同位体分離実験

2.5.1 用意するもの

1) 装 置

高圧定量ポンプ、圧力計

フラクションコレクター

原子吸光分光光度計　ANA-182F

表面電離型質量分析計　MAT261

2) 器 具

イオン交換カラム（内径 10mm×1000mm）

イオン交換樹脂　（AG MP50）

高圧テフロンバルブ

テフロンチューブ　外径 φ2mm

PP チューブ　φ16mm　200 本

ビーカー　100ml、200ml、 1 l

メスフラスコ　500ml

マイクロピペット　0.1～10μl、 100～1000μl

ポリビン　50ml　 20 個

白金線

レニウムフィラメントユニット

3) 薬 品

酢酸リチウム、 酢酸カリウム、 塩酸、 ヨウ化水素酸、

2.5.2 実験手順（簡易）

a. イオン交換樹脂のカラムへの充填

b. イオン交換樹脂を詰めたカラムの活性化及び洗浄

c. イオン交換カラムを H^+型にする。

実習時間の都合で、イオン交換カラム（内径 10mm×1000mm）に陽イオン交換樹脂 AG MP-50 を充填し、樹脂の H^+型への転換まで既に担当者が行っている。

d. 試料溶液、溶離液の調製　（必要な試薬を準備する）

0.5N 酢酸リチウム溶液の作成

0.2N 酢酸カリウム溶液の作成

リチウム標準溶液の調製（検量線作成用）

カリウム標準溶液の調製（検量線作成用）

e. クロマトグラフィー操作（イオン交換樹脂へリチウム負荷及び溶離）

クロマトグラフィー実験の部品をテフロンチューブで接続

（高圧定量ポンプ－圧力計－カラム－テフロンバルブ－フラクションコレクター）

試料溶液の導入（リチウム吸着帯の形成）

溶離液を通液してリチウム吸着帯の移動

白金線を用いて流出液中のリチウムの有無を調べる（炎色反応）

f. フラクションコレクターによる試料採取

各 PP チューブ 100 本の重さを計ってセットする。

g. リチウムの濃度分析（試料の希釈を含む）

各フラクションの試料を希釈して濃度分析用試料を作成

h. 質量分析用試料調製

試料を一定量とり、ヨウ化水素酸を加えてヨウ化物リチウムとする。(化学形の転換)

i. 同位体比分析

海水中のウランの同位体比を測定する。

表面電離型質量分析計 MAT261 で各フラクション試料のリチウム同位体比を測定する。

2.5.3 実験操作手順（詳細）

a. イオン交換樹脂のカラムへの充填

イオン交換カラム（内径 10mm×1000mm）に陽イオン交換樹脂 AG MP-50 を充填する操作手順は、以下の通りである。カラムの下部にあるテフロンバルブを閉じ、純水をカラムの半分程度まで張る。100mL のビーカーにイオン交換樹脂を適当量とる。これに純水を入れペースト状にする。スポイトを使い、イオン交換樹脂を少しずつカラムに充填する。最上部まで詰めたら、暫く放置しイオン樹脂を沈降させる。カラム上部から注射器とゴムチューブを用いて、上部に分離した水を抜く。その後、スポイトを用いてイオン交換樹脂を再度詰める。これを繰り返して、カラム最上部までイオン交換樹脂を充填する。

b. イオン交換樹脂を詰めたカラムの活性化及び洗浄

水酸化ナトリウムを 20g 秤量し、純水 500mL に溶解する（1N NaOH 水溶液の作成)。高圧ポンプ（定流量ポンプ）の流量を 10mL/min に設定する。1N NaOH 水溶液を 40 分間流す（計 400mL 樹脂容量の 5 倍)。次に、濃塩酸（12N）を 40mL 取り、500mL に希釈する（1N HCl 水溶液の作成)。高圧ポンプ（定流量ポンプ）の流量を 10mL/min に設定する。1N HCl 水溶液を 40 分間流す（計 400mL 樹脂容量の 5 倍)。

(厳密にはこの操作を 2～3 回繰り返す。)

次に、ビーカーに純水を 1000mL 取り、高圧ポンプ（定流量ポンプ）の流量を 10mL/min に設定して、純水を 40～60 分流す（計 400～600mL)。このとき時々出口の流出液の pH を pH 試験紙により測定する。中性になったらポンプを止めて終了となる。

c. イオン交換カラムを H^+型にする。

前操作の作業において既に H^+型になっているので、この作業は省略する。

d. 試料溶液、溶離液、の調整及びリチウム吸着帯の形成

0.5M 酢酸リチウム水溶液を作成して、カラムにリチウム吸着帯を形成させる。操作手順は、酢酸リチウム 4.95g を 150mL の純水に溶解して、ポンプ流量 8mL/min で、15 分間、120mL 流す。

0.2M 酢酸カリウム水溶液の作成は、19.6g の酢酸カリウムを純水に溶解し全体を 1000mL にする。

e. クロマトグラフィー操作（イオン交換樹脂へリチウム負荷及び溶離）

イオン交換カラムにリチウムを負荷して吸着帯を生成させ、次に 0.2M 酢酸カリウム水溶液で溶離展開する。このとき、流速は 9mL/min に設定する。この作業に必要な時間は、展開する吸着容量に依存する。AG MP-50 樹脂の場合では、リチウムが吸着してから全て溶離するまでに 700mL 要することから、1 時間 20 分である。

f. フラクションコレクターによる試料採取

フラクションコレクターに、あらかじめ 1 から 100 までの番号を記入した PP チューブ（プラ試験管）を 100 本セットする。このとき、各 PP チューブの重量を測定する。採取モードは「シンプル」に設定、待ち時間は 0 で、フラクションモードは「タイム」に、また、試料採取のインターバルは 1 分に設定する。さらに、プラ試験管の本数を 150 本以上に設定しておく。リチウムを交換カラムに負荷後、直に酢酸カリウム水溶液でリチウムを溶離展開するのであるが、このとき初期流出の 100mL 分は、メスシリンダーで別取りする。その後、フラクションコレクターを作動させて、流出液をフラクションコレクターで分別採取する。分別された採取されたプラ試験管の重量を測定し、そのプラ試験管の重量を差し引いて、正味液量の重さを計算する。クロマトグラフィーの終点（イオン交換樹脂からのリチウムの全溶離）を見つけるために、白金線を用いた炎色反応で確認する。つまり、流出液の一部を白金線につけ、バーナーで加熱すると、リチウムイオンの有無が分かる。極微量存在するとバーナーの炎が赤くなる。（原子吸光分光光度計のバーナーを用いる）
この作業に要する時間は、前作業のクロマトグラフィーの操作と平行しているが、一部プラ試験管の重量測定を、クロマト操作終了後に行う必要があるので、クロマトグラフィー操作に加算する時間として約 1 時間くらいである。

g. リチウムの濃度分析（試料の希釈を含む）

（先ず、標準試料の作成をする。原子吸光用標準溶液（1000ppm）から、0.5、1、2、3、5ppm の溶液を作る。100mL のポリプロピレン製びんに 99.996g の超純水をいれ、50μL、100μL、 200μL、 300μL、および 500μL のリチウム標準溶液を入れた後、超純水をピペットで加えて 100.000g にする。また、カリウムも同様に作る。）採取試料の濃度は 0.2M であるはずなので、これを 4ppm 程度に希釈して原子吸光分析用の試料を作成する。従って、約 333 倍に希釈する。100mL のメスフラスコに純水を 90mL 入れ、採取試料から 300μL の液をピペットで採取し、メスフラスコに加えて、更に純水を入れて 100mL とする。これを、50mL のポリビンに移し変えて、原子吸光分析用の試料とする。

希釈後の試料は原子吸光分光分析計を用いて炎光分析で濃度分析を行う。その装置の操作手順を以下に示す。

1) 室内のドラフトを ON にする。
2) 分析計のメインスイッチ ON
3) コンプレッサーのスイッチ ON
4) アセチレンのボンベのバルブを開く
5) バーナーの点火
6) 5ppm の標準溶液を用いて発光強度が最大になる波長を合わせる
　　リチウムの発光線：670.8nm
7) 装置が安定化するまで待つ（30～60 分）
8) 標準溶液の測定（検量線の作成）
9) 希釈済み試料の測定
10) 標準試料の測定（安定性の確認）

装置の詳細取扱には「取扱説明書」を参照する。

h. 質量分析用試料調整

フラクション試料からリチウム量として 100μg を採取して、5mL のスクリュー菅に入れる。これにヨウ化水素酸を 50μL 加える。次にホットプレート上で蒸発乾固させる。このとき、ホットプレート上の温度は 100～150℃位にして、試料を沸騰させないようにゆっくり蒸発乾固させ、(乾固したら純水を 100μL とヨウ化水素酸を 10μg 加えてもう一度蒸発乾固させ、過剰なヨウ素を気散させて) 試料をヨウ化リチウムに転換する。また、試料がイオン交換樹脂の不純物によって汚染されている場合は、はじめに硝酸で有機物を分解する。その後、ヨウ化水素酸を添加してリチウムをヨウ化物に転換する。

i. リチウム同位体比分析

リチウムの同位体比を測定するには、質量分析計を用いる。1 回のクロマト分離実験から測定すべき試料の数量は通常 10 点ほどである。1 回の測定に要する時間は通常 2 時間であるが、30－60 分で簡便に測定を行う。具体的測定手順は以下の通りである。

リチウム同位体比の測定は表面電離型質量分析計 MAT261 で測定する。フィラメントサポートにコの字形に貼られたレニウム製の蒸発用フィラメント中央部にマイクロピペットを用いてヨウ化リチウムをリチウム量で 2μg 塗布する。その様子を**図 2** に示す。フィラメントに約 1.8A 通電し、試料を乾燥させる。

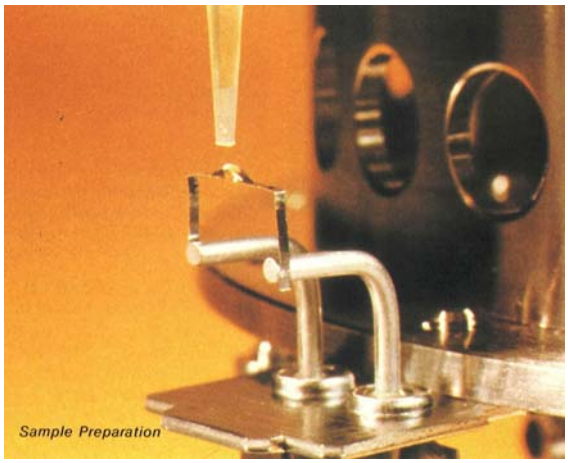


図 2 フィラメントに試料を塗布

このフィラメントと同型のレニウム製イオン化フィラメントをサンプルマガジンにセットする。このマガジンを質量分析計のイオン源に装着し、そこをターボ分子ポンプで、真空にする。真空度が十分良くなったら、イオン化フィラメントにゆっくり電流をかけると、フィラメントに塗布したリチウムのイオンが検出される。昇温時間は 20 分で行なう。安定なイオンビームが得られた段階で、ファラデーカップ検出器で $^{6}Li^{+}$と $^{7}Li^{+}$を交互に磁場を走査して測定する。

2.6 結果の整理

① バーナー等で，流入空気が少ないとき炎の色は黄色であるが、完全燃焼させると青色になる。その理由について記せ。
② リチウム溶離曲線作成（クロマトグラム）及び同位体分布曲線
③ 同位体分離係数の算出
④ 1 理論段相当高さ（HETP）の算出
⑤ 分離効率を高める方法について記せ。
⑥ 天然に存在するウラン同位体存在比について記せ。たとえば、海水中のウランの同位体比はウラン鉱石中の同位体比と異なっている。その理由について記せ。

3. 再処理工程コース

3.1 本コースの目的

ウランの酸化物を溶解し、溶媒抽出によってウランを分離することによって、核燃料再処理における基本となる燃料溶解及び溶媒抽出によるウランの分離について理解を図ることを目的とする。また、ウランの化学操作を通じウランの化学の理解も図る。

3.2 酸化物溶解と溶媒抽出について

日本の現行再処理はウラン酸化物（UO_2）を硝酸で溶解し、溶解されたウランをリン酸トリブチル（TBP）にて溶媒抽出して分離している。

ウラン酸化物としては二酸化ウラン（UO_2）、三酸化ウラン（UO_3）及び八酸化三ウラン（U_3O_8）が代表的な酸化物と知られている。実験室レベルでは UO_3 と U_3O_8 が合成可能である。本コースでは U_3O_8 を用い、その溶解過程を理解する。

溶媒抽出法は固体または液体試料中の 1 種類(または 2 種類以上)の成分物質を溶媒に溶解させて分離する方法である。試料が液体の場合には、混和しない抽出溶媒を選び、目的物質と特異的に反応する物質（抽出剤）を加えることによって分離する。一般に、水－有機溶媒系の抽出を利用した分離分析法であり、抽出剤は有機溶媒に混和するものを用いる。核燃料再処理に関しては TBP がよく用いられ、プルトニウムの分離に利用される。本コースでは抽出剤としてトリ-n-オクチルホスフィンオキサイド(Tri-n-octylphosphine oxide TOPO)及びβジケトン類であるテノイルトリフルオロアセトン(Thenoyl trifluoro acetone TTA)を用いて有機溶媒としてキシレンを用いて行う。抽出された目的物質は再度、水溶液に抽出（逆抽出）され利用されるのが一般的であるため、本コースでも逆抽出を行うことで、溶媒抽出の理解を深める。

・事前レポート課題：U_3O_8 が硝酸に溶解する時の化学反応式を求める。また使用する抽出剤の化学式について示すこと。

3.3 実験法

事前にルツボに用意された U_3O_8 を用い、0.1M 硝酸にて計算量の液量を投入する（U_3O_8 の重量は実験を始める前に提示しておく）。ホットプレートにて加温し、その溶解過程を観察する。用意された 0.1M 硝酸溶液を用いウラン濃度を 400ppm とするように加えてウラン溶液とする。溶媒抽出実験はこの試料溶液を用いて行う。

溶媒抽出実験は 0.2M TOPO、TTA キシレン溶液を用いる。抽出する金属溶液は上記のウラン溶液とアルカリ金属からはセシウム、アルカリ土類金属からストロンチウム(1M 硝酸中 1000ppm)、希土類元素からはユーロピウム(0.5M 塩酸中 1000ppm)を対象として行う。金属溶液を 3ml 試験管に取り、TOPO 及び TTA 抽出溶媒を 3ml 加え，よく混合させ、静置する。二相が完全に分離したことを確認した後、各相を注意深くマイクロシリンジにて

2ml プラスチック容器に分取する。分取した溶液は蛍光 X 線測定装置を用いて測定する。測定が終了したウラン抽出有機相を試験管に移し、1ml のキシレンを加えたのち、1M 炭酸ナトリウム水溶液 3ml にて同様に抽出する。さらに、ウラン溶液とストロンチウム溶液を各 1.5ml 試験管に取り、TOPO 溶液にて抽出する。測定は上記の方法と同様とする。

3.4　実験レポート

・測定された蛍光 X 線の各金属に係る強度についてまとめ、ウランについて求めた検量線から抽出されたウラン濃度を算出し、抽出現象についてまとめる。また相乗効果について調べ、得られた結果について考察すること。

・1M 炭酸ナトリウム水溶液にて逆抽出した結果について、ウラン炭酸錯体について調べた結果を用いて考察すること。

3.5　実験の詳細

「全体」

1）　ピペットの安全取扱い
2）　酸化ウランの酸溶解
3）　蛍光X線測定装置を使ったウランに関する検量線作成
4）　ウランの抽出
5）　セシウムの抽出
6）　ストロンチウムの抽出
7）　ユウロピウムの抽出
8）　ウランの逆抽出

第1回　1)、2)、3）
第2回　4)、5)、6)、7)、8）

（1）ピペットの安全取扱い

目的：ピペット（エッペンドルフピペット）を使用して検量する
方法：蒸留水を 2ml 取りその重量からピペットの検量を行う。
操作：

1）ピペットを 2ml に合わせる
2）100ml のビーカーを秤に乗せ、0 g にする。
3）さらに 100ml のビーカーを用意し、に蒸留水を約 50ml 入れる。
4）秤の上部の窓を開ける。
5）蒸留水をピペットで静かに吸い上げる。
6）秤の上部から中のビーカーに静かに滴下する。
7）秤の上部の窓をしめ、秤の読みを記録する。
8）秤の読みを 0 g にする。
9）4）から繰り返して最低 5 回測定する。

平均値を求めて評価する。

平均値：

（2）酸化ウランの溶解

目的：酸化ウランの性状と酸による溶解を理解する。

方法：酸化ウランに計算量の硝酸を加え、蒸留水により希釈する。

操作：

1）ルツボに用意された酸化ウランの性状（重さと色等）を記録する。

2）GM カウンターにより放射線量と測定し、記録する。

3）計算量の硝酸をピペットにより加える。

4）ホットプレートに乗せ加温する（約 50℃）

5）溶解過程を観察する。

6）溶解したことを確認したのち、ホットプレートから用意したバットに下ろす。

7）十分冷却したことを確認した後、再度 GM カウンターにより放射線量を測定し、記録する。

8）　ルツボにて溶解したウラン溶液を一旦、100ml 程度のビーカーに移す。ルツボは蒸留水によって 3 回洗浄すること。（洗浄した蒸留水はビーカーに入れる）

9）　希釈のためにビーカーに移したウラン溶液を 100 ml のメスフラスコに移す。8）と同様にビーカーは 3 回洗浄する。メスフラスコは目印の線まで蒸留水を加えて希釈する。蓋をして確実に閉まったことを確認した後、蓋の上からウラン溶液が漏れた時のためにペーパータオルをかぶせよく撹拌する。このときのウラン濃度を計算する

酸化ウランの重さ	g

酸化ウランの性状：

硝酸の量はウランの元素量の 4 倍量の酸を消費するが、そのままでは中性(pH=7)となり加水分解してしまう。そのため、過剰の酸を入れ、全体を 0.1 mol/l とするように加える。

計算：U=238.0289、U_3O_8=842.0819、HNO_3=63.0128(60%,d=1.38)

（3）蛍光X線測定装置を使ったウランに関する検量線作成

目的：蛍光 X 線測定装置からの強度と濃度との関係を調べ、蛍光 X 線測定装置の理解を図る。(テキスト最終ページ参照)

方法：ウラン溶液のウラン濃度を変え、その時の蛍光 X 線の強度を求め、ウラン濃度に対する蛍光 X 線強度の関係を調べる。同時に Cs、Sr、Eu についても測定し、その特性 X 線スペクトルを調べる。

操作：

1）（2）で作成したウラン溶液を 200 ml 容器に移した後、ウラン溶液を 2.0、1.5 ml を取り、蛍光 X 線測定用のプラスチック容器にそれぞれ分取する。1.5 ml とった容器に同量の蒸留水を加え、濃度を 1/2 にする(溶液１)。溶液１をさらに 1 ml 取り、同様にプラスチック容器に分取する。また、1 ml とった溶液にさらに蒸留水を 1 ml 加え、濃度を 1/2 にする(溶液２)。

2）上述した方法で作成した 3 種類の溶液を蛍光 X 線測定装置でウランに関するスペクトル強度を測定する。

測定方法

・なにも乗せずに測定する
・用意された軟質ガラス瓶を乗せて測定する
・溶液を入れていないプラスチック容器を測定する
・１）で作成したサンプルについて測定する。
・用意された他の金属イオン溶液をプラスチック容器に 2 ml 入れて測定する。

スペクトルの様子のメモ

ウラン溶液の蛍光 X 線スペクトル強度

原液：(mg/dm^3)	溶液 1：(mg/dm^3)	溶液 2：(mg/dm^3)

（３）溶媒抽出実験

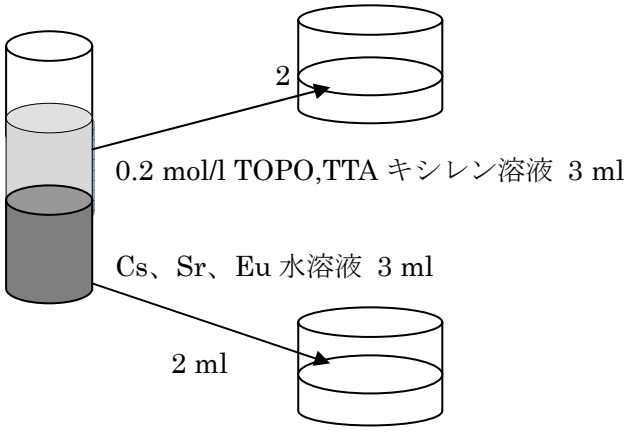
目的：TOPO 及び TTA を用いてキシレンにて溶媒抽出を行い溶媒抽出と相乗（共同）効果の理解を図る。

方法：TOPO 及び TTA をキシレンに溶かした溶液を用い、硝酸ウラニル溶液及び Cs、Sr、Eu 溶液について溶媒抽出を行い。水溶液層及び有機層の特定 X 線スペクトルから抽出現象を調べる。また、ウラニル溶液を TOPO 及び TTA に抽出し、更に TOPO と TTA が共存した抽出を行い、比較する。さらに、抽出された有機相から炭酸アンモニウムで逆抽出し、水溶液にウランが抽出されたことを確認する。

操作：

１）0.1mol/l の硝酸に溶かした Cs、Sr、Eu 水溶液を 3 ml 遠沈管に取り、さらに TOPO,TTA 各 0.2 mol/l が入ったキシレン溶液を 3 ml 加える。遠沈管のふたを閉め、上部からキムワイプをかぶせて十分に振る。遠沈管を試験管たてに静置する。キムワイプをかぶせたまま栓を少し緩め、内圧を常圧にする。

２）溶液が完全に２相になるまで静置し、溶液が 2 相になったら、栓をあけ、上相のキシレン溶液をマイクロピペットにより 2 ml 取り、蛍光 X 線測定用のカップに移す。さらに、下相の水溶液をマイクロピペットにより 2 ml 取り、同様に蛍光 X 線測定用のカップに移す。（Cs、Sr、Eu が入った溶液の溶媒抽出は各自行うこと）

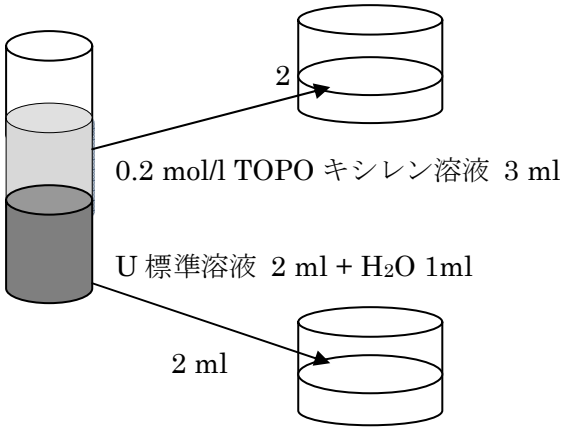


有機相及び水相の色：

考察：

Metal	Cs	Sr	Eu
Org. Intensity			
Aqua. Intensity			

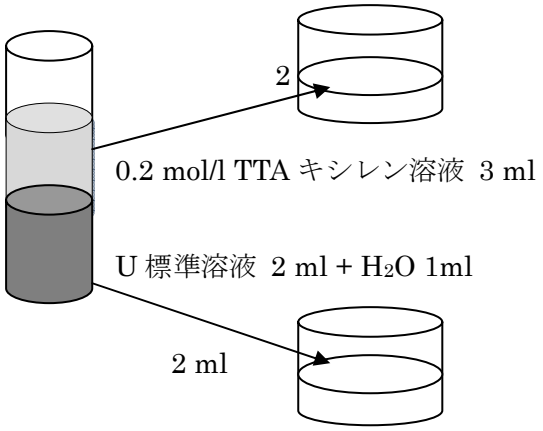
3）（2）で作った溶液を 2 ml 遠沈管に取り、さらに蒸留水を 1ml 加える。これに、TOPO が入ったキシレン溶液を 3ml 加える。1）同様に遠沈管を振り、静置する。2）と同様にしてサンプルを作成する。



有機相及び水相の色： 考察：

Metal	U	
Org. Intensity		
Aqua. Intensity		

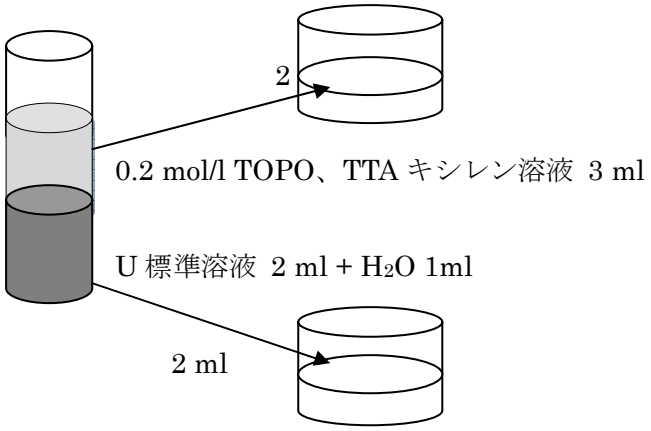
4） 3）と同様にして TTA が入ったキシレン溶液を使い同様にしてサンプルを作成する。



有機相及び水相の色： 考察：

Metal	U	
Org. Intensity		
Aqua. Intensity		

５）さらに、３）と同様にして TOPO,TTA が入ったキシレン溶液を使い同様にしてサンプルを作成する。



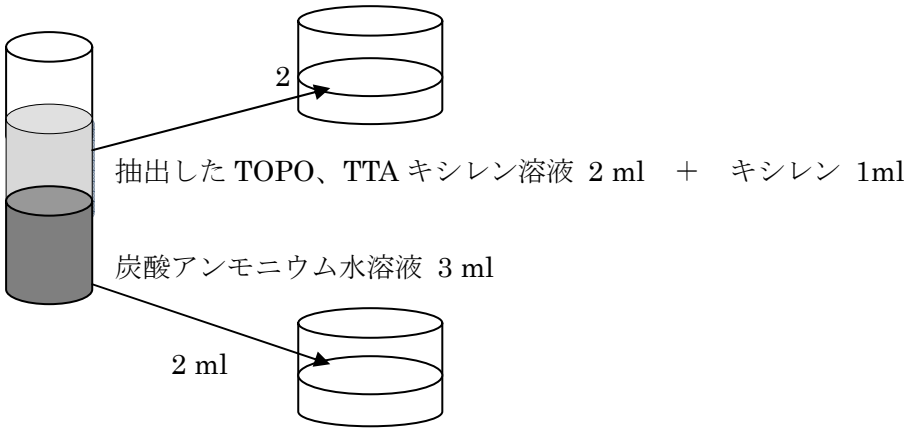
有機相及び水相の色： 考察：

Metal	U	
Org. Intensity		
Aqua. Intensity		

５）上記２）から５）までのサンプルを蛍光 X 線測定を行い、それぞれの金属の蛍光強度を測定する。先に求めた検量線からウランの濃度を算出し、分配比を求める。

７） 5）で作った有機溶媒相を遠沈管に移し、カップにキシレンを 1ml 入れ遠沈管に入れる（合計有機溶媒は 3 ml)。ここに、炭酸アンモニウム水溶液を 3 ml 加え１）及び２）の操作を行い、サンプルを作成する。

８） 7）で作成されたサンプルを蛍光 X 線測定を行い、ウランの強度を測定する。



有機相及び水相の色： 考察：

Metal	U	
Org. Intensity		
Aqua. Intensity		

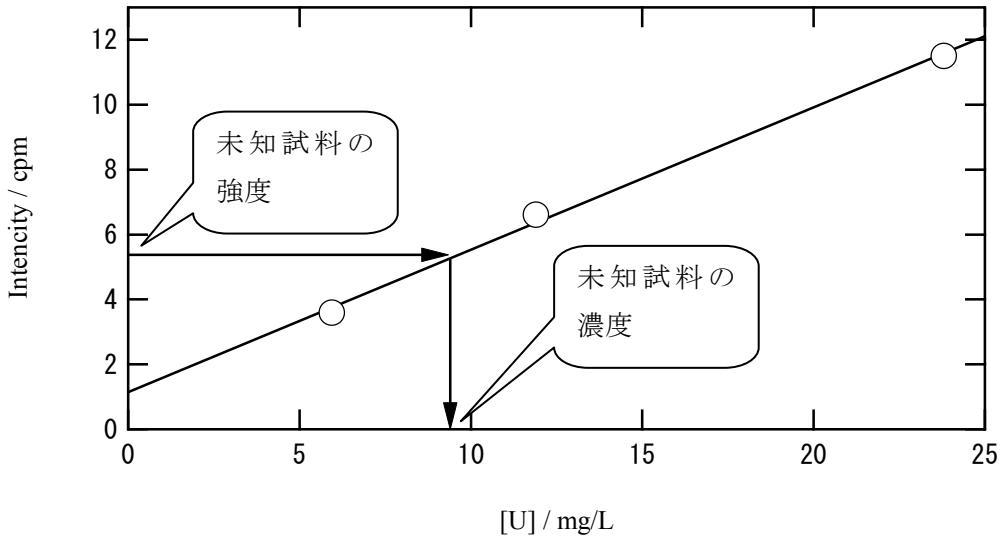
TOPO 及び TTA 単独抽出と混合抽出の場合の違いを示し、共同効果を考察する。
逆抽出についてその結果を示す。

抽出実験におけるデータ処理について

定量分析の為の関係線（検量線法、標準添加法および内標準法がある）

蛍光 X 線強度から物質の濃度の算出方法―検量線の作成と濃度決定―

検量線の作成：濃度が既知の試料溶液を予め調整し、その標準溶液列を用いて蛍光 X 線強度と濃度との関係線を作成する。未知試料を同様に処理して得られた測定強度から未知の濃度を求める（定量を行う)。



本来は切片を持たないことから、切片を持った場合、考察が必要となる。

分配比

抽出百分率（抽出率）を E, wo：有機相に抽出された目的成分、w：試料水中の全目的成分とすると

E(%) = (wo/w)x100　となる。

また分配比を D、Vo を有機相の体積、Vw を水相の体積とする。Cs,o を有機相中の溶質 s の濃度、Cs,w を水相中の溶質 s の濃度とすると

D ≡ Cs,o/Cs,w = (wo/ Vo)/((w － wo)/ Vw)

4. 廃棄物処理コース

4.1 本コースの目的

本コースでは、実験で発生するウラン廃液を精製処理する方法を実際に体験し、廃液処理の重要さと放射性廃棄物の処理法、特に核種分離法の重要性の理解を図る。また、沈殿法、溶媒抽出法について学んで来たが、ここではイオン交換法を学ぶことも目的の一つにしている

4.2 イオン交換によるウランの精製法

核種分離に用いるイオン交換法は陰イオン交換樹脂を用いる。金属イオンは溶液中で陰イオンと錯形成する。金属イオンに錯形成する陰イオンの数は酸の濃度（正確には水溶液中の陰イオン濃度）によって決まり、条件によっては、全体で電荷がマイナスになる状態になる。陰イオン交換樹脂による核種分離技術では塩酸溶液を用いるのが一般的である。陰イオン交換樹脂への各元素の吸着特性については分配係数としてまとめられている。分配係数は樹脂中のイオン濃度と溶液中のイオン濃度の比で定義されており、分配係数が大きなものほど樹脂に吸着する。強塩基性陰イオン交換樹脂を用いたときの分配係数を図 5-1 に示す。

分配係数を見ると 6 価のウラン(ウラニルイオン：UO_2^{2-})は塩酸濃度の増加とともに大きくなる傾向があり、濃い塩酸領域では陰イオン交換樹脂によく吸着することが分る。ところで、代表的な核分裂生成物には、アルカリ金属元素の Cs, アルカリ土類元素の Sr, Ba、希土類元素があるが、これらの元素はいずれも陰イオン交換樹脂では吸着しないことが図より見て取れる。したがって、ウランとこれらの元素が混ざっている溶液があるときは、ウランが良く吸着する条件でウランを吸着させて、吸着が維持できるような濃い塩酸で洗い流すことにより、これら核分裂生成物元素のみを洗い流すことが可能であり、またウランは薄い塩酸溶液では分配係数が小さくなることから樹脂から外して回収可能であることが分る。

・事前レポート課題：代表的な核分裂生成物の一つとして白金族元素である Pd があるが、Pd と U(VI)が含まれている溶液を陰イオン交換樹脂で互いに分離する方法を図 5-1 の分配係数から議論せよ。

また、クロマトグラフィを実施すると、図 5-2 のような曲線が得られるが、クロマトグラムを用いた分配係数の評価では、その定義から

$$D = (V_r - V_0)/V_s$$

であらわされる。D は分配係数で V_r, V_0 は図中に示してあり、V_rはピーク位置が現れるのに必要な溶離液量、V_0 はデッドボリュームでカラム中に樹脂が充填されていない空間の体積にあたる。したがって、V_r- V_0 は溶液中に含まれる目的元素イオンの溶離に必要な溶液量を意味している。V_s は樹脂体積である。したがって、分配係数が分かるとカラムを用いたクロマトグラフィ試験の結果を予め予想することが可能となる。

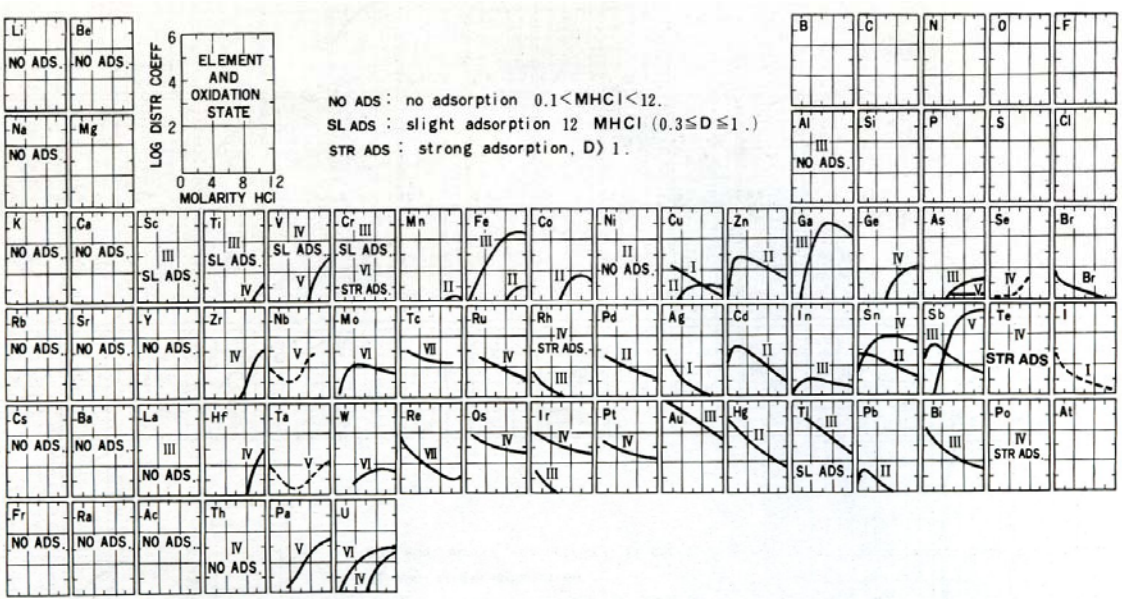


図 4-1 塩酸溶液での強塩基性陰イオン交換樹脂への核種元素の分配係数

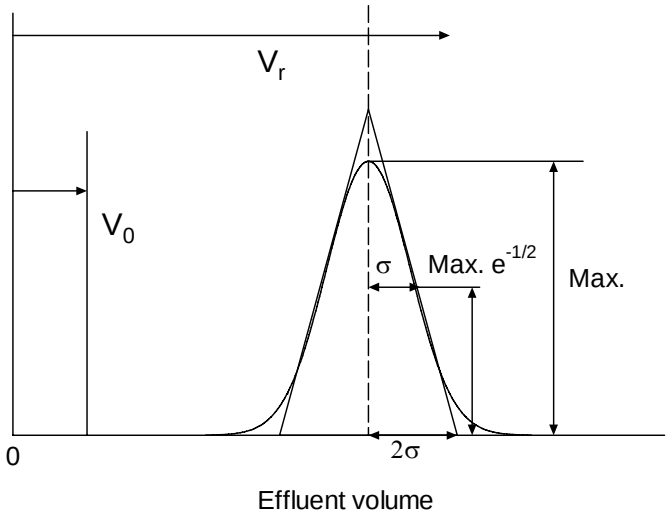


図 4-2 クロマトグラフィ試験による溶離結果模擬図

4.3 実験手法

4.3.1 バッチ試験によるウランの分配係数評価

(1) 塩酸濃度の異なるウラン溶液(U(VI))をあらかじめ準備してある。この溶液から各々 50μl 量り取り、マイラー膜状で蒸発乾固させる。(試料 A)

(2)塩酸濃度の異なるウラン溶液からそれぞれ 500μl 試料を取り、サンプル瓶に移す。(試料

B)
(3)陰イオン交換樹脂を正確に 100mg 秤量して、試料 B に入れる。この試料を時々振りながら約 1 時間置く。(試料 B1)

(4)試料 B1 から 50μl 取り出し、マイラー膜状で蒸発乾固させる。(試料 B2)

(5)試料 A, 試料 B2 を蛍光 X 線でウラン量を評価し、分配係数を求めなさい。
分配係数は D = (樹脂中に吸着したウラン量/樹脂の体積)
/(試料 B1 溶液中に含まれるウラン量/溶液の体積)
であらわされる。なお、樹脂の単位質量当たりの体積は 1.24ml/g である。

また、得られた分配係数から、ウランの溶離に必要な塩酸溶液の量を塩酸溶液が 6M, 9M の時を例にして求めなさい。なお、陰イオン交換樹脂のカラム体積は 4ml としてその 70%がデッドボリュームとする。

4.3.2 カラムを用いたウラン精製・回収試験

(1) ウランと模擬核分裂生成物元素(Sr, Cs, Eu)の混合溶液(6M 塩酸)(溶液 A)に含まれるウラン、Sr, Cs, Eu の濃度を蛍光 X 線装置を用いて評価する。
蛍光 X 線の測定法は、試料溶液から 200μl 取り、マイラー膜上で蒸発乾固させたものを用いて行なう。
溶液濃度は蛍光 X 線でのカウント数/ml で良い。

(2) 陰イオン交換樹脂を充填したカラム(陰イオン交換樹脂のカラム体積：4ml)に 6M 塩酸を 20ml ほど流し、コンディショニングを行なう。

(3) 樹脂上面の塩酸がなくなるぎりぎりまで（1mm 以下）待って、試料溶液を 0.5ml 着点させる。着点と同時にカラム下部から溶離する液の回収を始める。

(4) 樹脂に吸着したウランのバンドを見ながら、6M 塩酸を流し、ウランのバンドがカラム下部に来る前に止める。このときに流した溶液量をメスシリンダーを用いて計量し、記録する。

(5) 溶液を 1M 塩酸に切り替えてウランのバンドを全て流しだす。このときに流した溶液量を記録する。(溶液 B)

(6). 溶液 B 中の元素濃度を蛍光 X 線で評価する。

溶液 A と溶液 B を比較し、除染係数を評価すると共に、溶液 B 中のウランの純度も評価しなさい。また、ウランの回収率も求めなさい。

(4)実験レポート

・実験目的を記述すること。

・実験手順についてまとめること。

・実験手順の中に記してある課題を検討すること。

・実験結果をまとめてイオン交換による廃棄物処理について議論すること。

・最後に、実験の感想も書いてください。

なお、実験データについては誤差もあるので誤差についても議論してください。

5. 補足

5.1 放射線計測における誤差及び誤差の伝播

放射壊変は、崩壊する個々の原子が互いに独立して偶発的に崩壊するものであり、その確率分布は最も典型的なポアソン分布となる。したがって、ある一定の時間 t で計数値が N であった場合は、分散を σ^2 とすると、

$$\sigma^2 = N \tag{5.1}$$

となる。分散の平方根が標準偏差であり、差を標準偏差であらわすと、

$$N \pm \sqrt{N} \tag{5.2}$$

が総計数を誤差つきで表した表現となる。また、この時の計数率は

$$(N \pm \sqrt{N})/t \tag{5.3}$$

となる。放射線測定では計測時間 t を注意する必用が有る。つまり、放射線計測では、測定器の不感時間が存在するため、実時間と実際に計測している時間が異なるため、注意が必要である。

ところで測定で得られる値は必ずしも直接的な計測で得られるわけではない。得たい値が z がある測定可能な量 $x, y, \cdots$ の関数であるとき、即ち

$$z = \varphi(x, y, \cdots) \tag{5.4}$$

であるとき、分散は

$$\sigma_z^2 = \left(\frac{\partial \varphi}{\partial x}\right)_0^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial \varphi}{\partial y}\right)_0^2 \sigma_y^2 + \cdots, \tag{5.5}$$

測定値 x,y の分散が z の分散に伝播することが知られており、この式を誤差の伝播式と呼ぶ。なお、$\left(\partial\varphi/\partial x\right)_0^2$ などは測定値 x の平均 $\bar{x}$ における偏微分係数である。誤差の伝播式は、系統誤差が無視できるほど小さく、測定量の誤差が互いに独立でなければ適用できない。ここで、四則演算の簡単な誤差の伝播についてまとめる。

$$z = ax \pm by, \qquad \sigma_z^2 = (a^2\sigma_x^2 + b^2\sigma_y^2),$$

$$z = axy, \qquad \frac{\sigma_z^2}{z^2} = \frac{\sigma_x^2}{x^2} + \frac{\sigma_y^2}{y^2},$$

$$z = a\frac{x}{y}, \qquad \frac{\sigma_z^2}{z^2} = \frac{\sigma_x^2}{x^2} + \frac{\sigma_y^2}{y^2},$$

添付２　「核燃料サイクル工学実験テキスト」

核燃料サイクル工学実験

東京工業大学大学院

茨城大学大学院

東海大学大学院

本テキストは国立大学法人東京工業大学が経済産業省「平成２２年度原子力人材育成プログラム（原子力総合技術プログラム)」の委託契約に基づき行った事業の一部である。

平成 23 年 1 月

目次

1.　核燃料サイクルについて　・・・

1. 核燃料サイクルについて

原子力では、核燃料物質の核分裂で生じるエネルギーを利用するものである。核燃料としては、ウランあるいはプルトニウムを用いるのが現在最も一般的なものである。原子炉で核分裂させた核燃料物質は、核分裂によって減少するとともに燃焼を阻害する核分裂生成物になる。また、中性子の吸収等により核燃料として利用可能なプルトニウムが生成する。この使用済燃料から核分裂生成物と核燃料となるウランとプルトニウムを取り出すことを再処理と呼び、再処理を行うことにより、再び、原子炉で燃料として利用することが出来る。この様に核燃料の流れが輪のようになることから、この核燃料の流れを「核燃料サイクル」と呼ぶ。核燃料サイクルの概略図を図 1.1 に示し、より詳細に説明する。

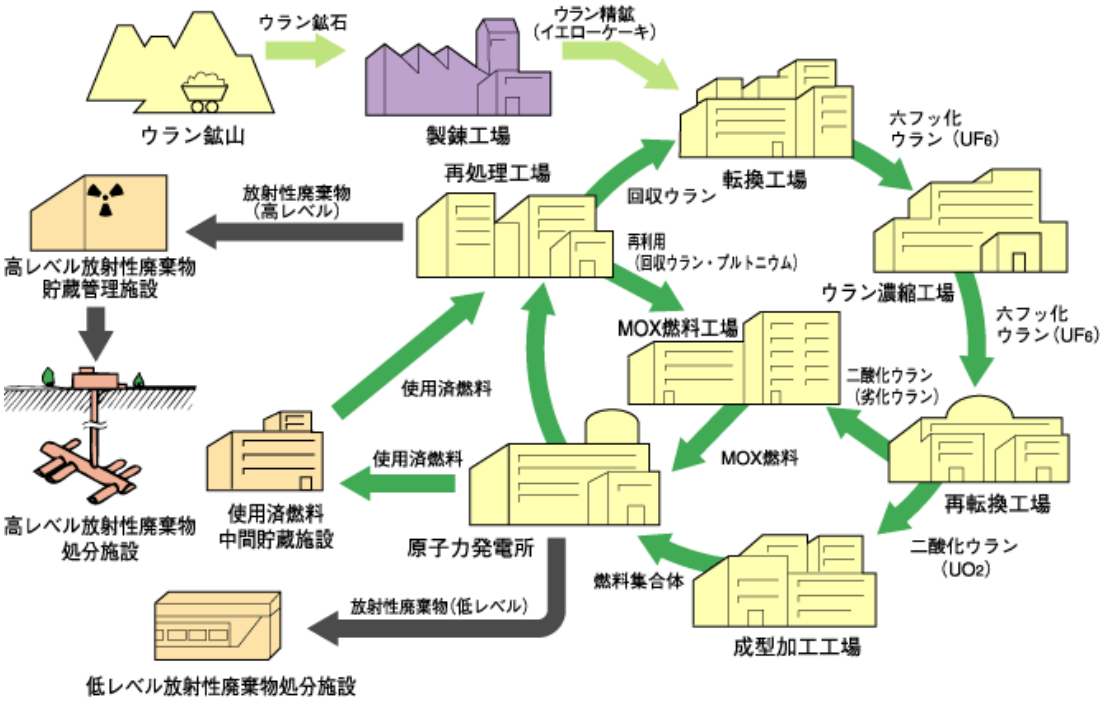


図 1.1 核燃料サイクル概略図

核燃料物質としてウランは天然に存在しており、ウラン鉱床からウラン鉱物として採掘される。採掘された鉱石から、ウランを取り出し精製する工程が、製錬工程である。製錬工程には、鉱山の山元で大まかに製錬する粗製錬とウランを濃縮しやすい化学形に転換させる前にウランの純度を高める精製錬とがある。精製錬と化学転換は転換工場で尾根割れることが多く、まとめて転換工程と呼ぶこととする。粗製錬で得られたウランの化合物はイエローケーキと通称呼ばれている。正式には、ウラン精鉱と呼ぶが黄色いケーキ上のものであることが多いのでその様に呼ばれている。イエローケーキの化学組成は粗精錬の手法によって異なる。現在世界で最も使われている原子炉は軽水炉と呼ばれるものであり、

軽水炉では鉱山から取り出したウランをそのまま燃料として使うことはできない。ウランには、核分裂を起こしやすいウラン-235 とウラン-238 の同位体から主に構成されており、ウラン-235 の比率が 0.72%しかないため、この比率では核分裂の維持が難しいからである。したがって、ウラン-235 の比率を高める必要があり、軽水炉で用いられる燃料はウラン-235 の比率を 3~5%まで高めている。このウランの同位体組成を変化させる工程がウラン濃縮である。ウラン濃縮工程でウラン-235 の比率を高めたものを原子炉で燃料として利用できるように化学形を転換する工程を再転換工程と呼び、再転換工程では二酸化ウラン(UO_2)-に転換される。UO2 をペレット上に焼き固めたものが、ウランペレットでこれを筒状の鞘に収めたものを燃料棒と呼ぶ。燃料棒を何本かまとめたものを燃料集合体と呼び、燃料集合体をまとめたものが原子炉の炉心となる。原子炉で、燃料を燃焼（核分裂）させたあと、それらは使用済燃料として取り出される。原子炉中でウラン-238 が中性子を捕獲して、それがβ崩壊でネプツニウムを経て更にβ崩壊して生まれるのがプルトニウムである。プルトニウムもまた原子炉で燃料と成り得る物である。使用済燃料中のウランの同位体比は天然組成のものよりもウラン-235 の比率が高く、1~2%であり、このウランを回収することも有用である。したがって、使用済燃料の再処理では、プルトニウムを取り出すと共にウランも回収する。回収されたウラン（回収ウランと呼ばれている）は、また濃縮工程を経て、燃料として利用される。プルトニウムはウランと混ぜ合わされて MOX 燃料とされ、原子炉で利用される。ウランとプルトニウムが回収された使用済燃料は高レベル廃棄物と呼ばれており、これらは現状ではガラスと共に固められ（ガラス固化体）、地中深くに処分する方法（地層処分）が考えられている。地層処分の負荷を軽減する方法として考えられている方法として分離・核変換処理と呼ばれているものが近年注目されるようになってきている。分離・核変換処理は高レベル廃棄物の処分方法として長半減期核種や熱を発生する核種を高レベル廃棄物から分離し、それらを原子炉等で核変換する方法である。この手法により、空間的に処分場面積を減らすだけでなく、処分場の放射線管理に要する時間を減らすことが出来るものである。核燃料サイクルの内、ウラン鉱石の採掘から原子炉までの道筋をフロントエンド、原子炉から処分までの道筋をバックエンドと呼ぶことも覚えておくと良いだろう。

今回の核燃料サイクル実験では、上記の核燃料サイクルで出てくる様々な工程を実際にウランを用いて学習するのが目的である。本実験では、「精製転換コース」、「濃縮（同位体分離分析）工程コース」、「再処理工程コース」、「廃棄物処理コース」と４つのコースに分け、それぞれのコースを体験する。「精製転換コース」は粗製錬と転換工程に再転換工程で良く使われる技術を学ぶものであり、「濃縮（同位体分離分析）工程コース」は実際のウラン濃縮の代わりに、より同位体濃縮が簡単なリチウムを用いて模擬体験するものである。「再処理工程コース」では再処理で使われている溶媒抽出に関する技術について学ぶものである。「廃棄物処理コース」は、上記の高レベル廃棄物の分離・核変換技術に関わる核種分離技術の基礎を学ぶ。また、本核燃料サイクル実験において「精製転換コース」では沈

殿法と呼ばれる手法を、「再処理工程コース」では溶媒抽出と呼ばれる手法を、「廃棄物処理コース」はイオン交換によるカラム分離と呼ばれる手法を学ぶ。この沈殿、溶媒抽出、カラム分離（あるいはクロマトグラフィ）の３種類の手法は、分離精製の化学的手法で最も使われるもので重要なものであり、今回のウランの分離精製だけでなく、その他の元素や物質の分離精製にも応用可能であり、今回の方法で一通り体験し、その違いを学ぶことによって将来役に立つことがあるだろう。

実際の精製転換について以下に簡単に示す。まず、採掘されたウラン鉱石を溶液にする必用があるが、溶液にする方法としては、硫酸に浸出させてウランを溶解させる硫酸浸出と方法と炭酸ソーダを用いる炭酸ソーダ浸出法が良く知られている。炭酸ソーダ法は鉱石中に炭酸カルシウムが 5~6%以上含まれている時に適応が出来るのと、ウラン以外のものをあまり溶かさないので、鉱石を溶かした溶液（貴液と呼ぶ）を直接、沈殿法を適用することが出来ると言う利点がある。ただし、総合的な工場建設費は硫酸と比べると 10%ほど高くなるといわれている。次に貴液を精製する方法として、アミンを用いた抽出やイオン交換による方法を組み合わせ、最終的にウランを選択的に沈殿させることによる行う。イエローケーキを熱して酸化物にした後、化学転換する。ウラン濃縮では、ガス拡散法や遠心分離法が主に使われており、これらはフッ化物であるため、フッ化物に転換することが多い、再転換ではフッ化物を酸化物にするために、フッ化ウランを水と反応させて溶液とした後で沈殿させ、沈殿したものを熱して酸化物にする。

ウラン濃縮では、かつてはガス拡散法が使われていたが、現在、主流は遠心分離に移ってきている。ガス拡散法も遠心分離もともにウランを気体状にして扱う。幸い、ウランの６フッ化物は昇華点が 56.4℃であるため、気体にするのが簡単であるので、６フッ化ウランが使われている。別のウラン濃縮法として、東京工業大学と旭化成が中心になって開発した日本独自の方法として化学法と呼ばれるものがある。化学法ではウランを溶液で用いて、化学状態の違いにより発現する同位体効果を利用し、イオン交換クロマトグラフィで同位体を濃縮する方法である。この方法では、塩酸溶液を用いるので塩酸への溶解が化学転換となる。今回の核燃料サイクル実験では、ウランの代わりにリチウムを用いて化学交換法による同位体濃縮をイオン交換クロマトグラフィで実施する。

再処理工程は、PUREX と呼ばれる溶媒抽出法が実際に用いられている。PUREX では抽出剤に TBP(tri-butyl-phosphate)を用い、ウランとプルトニウムを TBP との錯形成を利用し、溶媒側に抽出し、さらにプルトニウムを還元することによって、ウランとプルトニウムを分離する手法である。今回の核燃料サイクル実験では ウランのみを対象として抽出実験を行う。

高レベル廃棄物の処分方法として重要な核種分離の方法としては、現在、日本とフランスが中心になり、研究開発を行っている。フランスでは溶媒抽出による核種分離を目指しているが、日本では、溶媒抽出だけでなく、抽出剤を固形化させた固体状の抽出剤を利用したクロマトグラフィによる分離技術も盛んに研究されており、またイオン交換をベース

にしたクロマトグラフィによる分離技術も研究されている。固体状抽出剤を用いた分離技術とイオン交換を用いた分離技術は、分離機構そのものは異なるが、分離技術については共通している。そこで今回の実験では、クロマトグラフィの基礎的な実験を用いて、簡単な核種分離技術の技術を体験する。なお、本手法は、実験研究で用いたウラン廃液を処理し、再利用するときに実際に用いている技術であることも付け加えておく。

2. 精製転換コース

2.1 本コースの目的

精製・転換コースでは沈殿法を通して核燃料サイクルにおけるフロントエンドでのウラン精製法を学ぶのを目的とする。

2.2 ウランの精製・転換について

ウランは鉱石として取り出された後、硫酸で溶かし、水酸化ナトリウム、アンモニア水、もしくは過酸化水素を加えて沈殿させて精製を行なう。こうして作られた沈殿物を取り出したものがイエローケーキと呼ばれるものである。このイエローケーキを熱処理して酸化物(3 酸化ウラン：UO_3)に転換する。更に、3 酸化ウランを UF_6 に転換し、同位体濃縮を行なう。同位体濃縮を行なった UF_6 を再転換し、ウランペレット(UO_2)を作るわけであるが、この再転換過程においても溶液に沈殿法により精製を行なう。また、沈殿によるウランの精製は様々な状況で用いられ、状況に応じてアンモニア水(あるいはアンモニアガスの吹き込み)、過酸化水素によって実施される。

レポート課題：ウラニル(UO_2^{2+})が解けている溶液に水酸化ナトリウム溶液を加えると重ウラン酸ナトリウム($Na_2U_2O_7$)、アンモニア水を加えると重ウラン酸アンモニウム($(NH_4)_2U_2O_7$)、過酸化水素を加えると過酸化ウラン水和物($UO_4・2H_2O$)を得ることができる。硝酸ウラニル($UO_2(NO_4)_2$)の水溶液を例に取り、重ウラン酸アンモニウムの生成と過酸化ウラン水和物の生成の化学反応式を示しなさい。

2.3 実験法

本大学院生実験では、予め硝酸ウラニルを溶かした溶液を沈殿して、回収率を確認する実験と不純物を加えた硝酸ウラニル溶液を沈殿法を用いてウランを精製する方法を試みる。本実験では、重ウラン酸アンモニウム沈殿報と過酸化水素沈殿法の 2 法を行う。

2.3.1 実験手順

沈殿確認実験

(1) 試料 A にはウラン溶液(硝酸ウラニル水溶液)が入っている。その中から 2ml 取り出し、サンプル瓶に移す。その操作を 2 回行う。つまり、サンプル瓶に 2ml 入った試料を二つ作成する。それら試料をそれぞれ A1-1, A1-2 とする。

(2) 試料 A から 50μl 試料を取り、カーボン箔の上で蒸発乾固させて測定用試料とする。(A 測定試料)

(3) 測定用試料の α 線測定を行なう。測定時間は 7,200 秒(2 時間)とする。

Q1. 検出効率 50%として、2ml 中に含まれるウランの量(mol)を計算してください。

α線測定はU-238で行ないますが、同位体比を考慮して計算してください。（ウランの同位体比は天然同位体比とする）

(4) 試料A1-1にアンモニア水(28%, 比重0.9)を0.5ml加えて、沈殿を生成させる。
少し暖めて、沈殿が十分にできるまで熟成させる。

Q.2 Q1で求められたウランの量から、沈殿反応に必要なアンモニア濃度の量(mol)を見積もり、化学量論的に見て、今回加えたアンモニア水の量を議論してください。

(5) 試料A1-2に過酸化水素水(30%, 比重1.1)を0.5ml加えて、沈殿を生成させる。
少し暖めて、沈殿が十分にできるまで熟成させる。

Q3. Q1で求められたウランの量から、沈殿反応に必要な過酸化濃度の量(mol)を見積もり、化学量論的に見て、今回加えた過酸化水素水の量を議論してください。

(6) アンモニア水で沈殿させた試料の上澄み液を吸引ろ過し、ろ過した試料をA2-1とし、サンプル瓶に移す。

(7) 試料A2-1から50μl試料を取り、カーボン箔の上で蒸発乾固させて測定用試料とする。
(A2-1測定試料)

(8) 過酸化水素法で沈殿を生成させた試料の上澄み液を吸引ろ過し、ろ過した試料をA2-2とし、サンプル瓶に移す。

(9) 試料A2-2から50μl試料を取り、カーボン箔の上で蒸発乾固させて測定用試料とする。
(A2-2測定試料)

(10) 蛍光X線装置を用いてウランの沈殿生成率を評価する。

・カーボン箔を蛍光X線装置に入れて、バックグラウンドの測定を行なう。
・A測定試料を蛍光X線装置に入れて、ウランの測定を行なう。
・A2-1測定試料を蛍光X線装置に入れて、ウランの測定を行なう。
・A2-2測定試料を蛍光X線装置に入れて、ウランの測定を行なう。

（上記の順番は変わってもかまわない。）

測定は50keVのX線を用いる。測定時間とX線管の電流値は固定する。
（測定時間は正味の測定時間を示すこと）

測定時間＿＿＿＿＿＿s

電流値＿＿＿＿＿＿μA

(11) A2-1 測定試料のα線測定を行なう。測定条件は(3)と同じ。

Q4. 沈殿生成率を評価し、Q2, Q3 の議論等を踏まえ、その率について議論してください。

沈殿生成率について、重ウラン酸アンモニウム沈殿法と過酸化水素沈殿法を比較して議論してください。

また、アンモニウム沈殿法については２種類の測定法を行っているが、この測定法による影響があるか否か、また、その理由について議論してください。

沈殿法による精製試験

(1) 試料 B にはウラン溶液と未知の元素が入っている。その中から 2ml 取り出し、サンプル瓶に移す。その操作を２回行う。つまり、サンプル瓶に 2ml 入った試料を二つ作成する。それら試料をそれぞれ B1-1, B1-2 とする。

(2) 試料 B1-1 にアンモニア水(28%, 比重 0.9)を 0.5ml 加えて、沈殿を生成させる。
0.5ml で沈殿が十分発生しないときは、更に 0.5ml ずつ加える。加えた量については正確に記録すること。

(3) 試料 B1-2 に過酸化水素水(30%, 比重 1.1)を 0.5ml 加えて、沈殿を生成させる。
0.5ml で沈殿が十分発生しないときは、更に 0.5ml ずつ加える。加えた量については正確に記録すること。

(4) 沈殿を生成させた試料の上澄み液を取り、その上澄みを遠心分離機で掛けて沈殿を取り除いた試料の内、アンモニアを用いたものを B2-1 とし、過酸化水素水を用いたものを B2-2 とし、それぞれをサンプル瓶に移す。

(5) 試料 B、B2-1 および B2-2 から 50μl 試料を取り、蛍光 X 線用試料皿にとり、蒸発乾固させてそれぞれ測定用試料を作成する。(B 測定試料、B2-1 測定試料、B2-2 測定試料)

(6) 蛍光 X 線を用いた試料測定を行なう。

Q5. B 測定試料を用いた結果より、未知元素が何か評価してください。

Q6. ウランは沈殿として回収されます。ウランの回収率を評価してください。

Q7. この実験では U と共に様々な元素が混入している系から、それら不純物を取り除き、製品として純度の高いウランを求めるためのものであるが、ウランがどれだけ精製されたかを評価するために次式で表される除染係数を評価してください。

除染係数(=(試料 B 溶液中の未知元素量/溶液中のウラン量)
/(沈殿中の未知元素量/沈殿中ウラン量))

なお、複数の元素（Q5 で評価した未知元素）があるときは、その各々の元素について

評価してください。特に、重ウラン酸アンモニウム法で行った精製と過酸化水素沈殿法で行った精製とで違いがあるか、評価してください。

レポート：事前レポートに加え、上記 Q1-Q7 の問題に答えなさい。
レポートには目的、実験方法を必ず記載すること。
実験で用いた測定機器について、原理を調べて記入すること。
実験データは誤差も含めて議論すること。
最後に実験の感想も記述してください。

注意）誤差の評価法については「5.補足」に記述してあるので、参考にすること
---

3. 濃縮（同位体分離分析）工程コース

3.1 目的

イオン交換法による濃縮法の原理，ウラン同位体の種類と性質，質量分析計の原理について理解を図る。

3.2　はじめに

同位体は極めて似通った化学的性質を持つことから、その分離は極めて難しい。同位体分離法は個別分離法と統計的分離法に分けられ、電磁分離法やレーザー分離法などは個別分離法である。一方、統計的分離法には化学交換法、分別蒸留法、気体拡散法、遠心分離法、熱拡散法、電解法などがある。目的元素に応じて様々な方法がある。電磁分離法は 1913 年に Thomson によってネオンのビームが電磁場を通過し、写真乾板に Ne-20 と Ne-22 の飛跡が記録されたことから、その分離の可能性が示された。これは同時に安定同位体の発見であり、質量分析計の原理でもある。電磁分離法の装置では分離される量が少ないが多くの元素に適用されることから、研究のために用いる個別の同位体の生産に用いられる。Aston は 1920 年にネオンを多孔質の粘土の管に通してその同位体を分離した。この方法がガス拡散法の始まりである。熱拡散法による同位体の分離に関しては、熱拡散効果の存在が 1911 年に Enskog によって理論的に予測され、その可能性が古くから知られていた。1939 年に Clusius と Dickel が熱拡散塔を開発して、Cl-35 と Cl-37 をそれぞれ 99%まで濃縮した。しかし、熱拡散法の同位体分離は小規模の分離には良いが、エネルギー消費が大きく、効率が悪いことから大規模の分離には適さない。

イオン交換法はイオン交換体を用いる方法で、化学交換法の一種である。化学交換法は溶液内に共存する種々の化学種あるいは化合物間の平衡交換反応の同位体効果に基づく方法である。即ち、同位体によって化学反応速度定数や化学反応平衡定数が僅かに異なり、この差異が同位体効果である。この化学反応平衡定数の同位体効果が同位体分離に利用される。その同位体分離法は 1938 年に Taylor と Urey がリチウム及びカリウム同位体を濃縮して以来多くの研究が成されている。

ウランのイオン交換法による同位体分離法には、(1)4 価ウランの錯形成反応、(2)6 価ウランの錯形成反応、(3)4 価－6 価ウランの電子交換反応、を用いた方法があり、この分離係数(1)は 1.00006、(2)は 1.0002、(3)は 1.001 である。(3)の電子交換反応系においては旭化成において Super 法ウラン濃縮が準工業規模まで開発された。

濃縮（同位体分離分析）工程コースでは、ウラン濃縮法の一つであるイオン交換体等の吸着体を用いた化学濃縮法の実験及び表面電離型質量分析計による天然に存在するウランの同位体測定やリチウム濃縮（同位体分離）実験で得たリチウムの同位体比測定を行う。

3.3　イオン交換の同位体効果

イオン交換法はイオン交換体を用いる方法で、化学交換法の一種である。化学交換法は

溶液内に共存する種々の化学種あるいは化合物間の平衡交換反応の同位体効果に基づく方法である。即ち、同位体によって化学反応速度定数や化学反応平衡定数が僅かに異なり、この差異が同位体効果である。この化学反応平衡定数の同位体効果が同位体分離に利用される。同位体 A、B が、反応基 X、Y と結合した 2 種類の化学種が共存している場合、化学種間に次の反応が成立つ。

$$AX + BY \rightleftarrows BX + AY \qquad (1)$$

この(1)式の同位体交換反応の平衡定数 K が 1 より少しずれる。この僅かの差異を ε_o で表示し、$K = 1 + \varepsilon_o$ となる。リチウム、ホウ素、窒素等の元素における同位体の ε_o は、0.01～0.06 であり、ウランの場合、6 価ウランの錯形成反応系で 0.00002 である。このとき 2 相に化学種が分配するようにして、片方の相に一方の化学種を選択的に取り込むようにする。つまり、イオン交換体と溶液の 2 相を考え、この両相の化学種間の同位体平衡反応を利用して同位体分離をする。

イオン交換を利用した最初のリチウム同位体分離は Taylor と Urey の実験である。無機イオン交換体であるゼオライトをステンレス製のパイプに詰め、塩化リチウムを流してリチウムの同位体分離に成功した。その後、Lee, Begun, Drury 等は、有機陽イオン交換樹脂 Dowex 50 を用いて、溶離クロマトグラフィーで一段の分離係数を実測した。

分離係数 ε は $\varepsilon = \Sigma f_i(R_i - R_o)/QR_o(1-R_o)$ で求められる。

ここで、Q はイオン交換全容量、R_o は feed の Li 同位体のモルフラクションで、R_i は各フラクションの Li 同位体のモルフラクション、f_i は各フラクションのリチウム量である。

1 理論段相当高さ（HETP）は、

$HETP = \varepsilon/k + 1/k^2L$ で求められる。

ここで、ε は上記に示す分離係数であり、k は右**図 3.1** に示すような傾きを表し、L はクロマトグラフィーの泳動距離で単位は cm である。r はフラクションのリチウム同位体比であり、r_o は feed のリチウム同位体比を表わす。

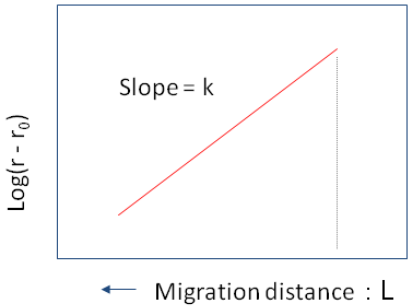


図 3.1 同位体濃縮部の傾き k

3.4 同位体比分析

一般に同位体比の測定は、質量分析装置を用いる質量分析法で行われる。質量分析装置とは原子、分子等をイオン化した後、質量によって各々分離してその量を個々に測定する装置である。したがって質量分析装置は原子、分子をイオン化して取り出すイオン源部、このイオンを質量分離する分析部、及びこれらを検出する検出部の 3 部より成り立っている。イオン化及び質量分離にはいろいろな方法があり、たとえばイオン化の方法によって分類すると電子衝撃型、化学イオン化型、表面電離型、高周波放電型、イオン衝撃型、電

界電離型、光電離型、高周波誘導プラズマ型などがある。また質量分離の方法によって分類すると磁場型、四重極型、飛行時間型、イオンサイクロトロン型があり、このうち磁場型と四重極型が現在広く用いられている。イオンの捕集器としてはファラデーカップまたは二次電子増倍管が用いられている。これらの後段に負帰還直流増幅器を接続して微小電流を検出する。イオン電流 10^{-14}A 以上の微小電流であればイオンの捕集器としてファラデーカップのみでイオン電流を精度よく測定できるが、10^{-14}A 以下の極微小電流のときは二次電子増倍管を使用しなければならない。

同位体比の測定は前述したように試料をイオン化してそのイオン量を計測することによっておこなわれる。この場合分析試料の絶対値（真値）と観測される測定値の間の関係を慎重に較正しておかなければならない。それはたとえば、用いる測定装置の違いによって異なる測定値を与えることがあるからである。そこで同位体比の測定には一般に標準物質の同位体比と試料の同位体比を比較する相対比法が用いられている。また同じ装置であっても検出器の違いによって異なることがあり、これらは標準試料あるいは同じ試料を用いてあらかじめ補正係数を定めておく必要がある。

同位体比を表示する場合、しばしば試料の同位体比を標準物質の同位体比からの偏差として千分率（単位は‰、パーミル）で表すことがある。偏差（δ）は次の式で定義される。

$$\delta = \left(\frac{R_{Sample}}{R_{Standard}} - 1 \right) \times 1000$$

ここで、R_{Sample} は試料の同位体比、$R_{Standard}$ は標準物質の同位体比であり、リチウム同位体比の場合には R は $^{7}Li/^{6}Li$ を示し、δ は $\delta\,^{7}Li$ を示す。標準物質としては、アメリカの標準技術研究所(NIST)の炭酸リチウム（LSVEC-Li)や EU の共同研究センター標準物質計測研究所(IRMM)の炭酸リチウム（IRMM-016a）を用いる。試料のリチウム同位体比が標準試料のリチウム同位体比に一致したとき $\delta\,^{7}Li = 0$ ‰ である。このように同位体比を表すときはこの δ 値、あるいは NIST 等の標準炭酸リチウムのリチウム同位体比に規格化すると、絶対値で表示されることになる。

3.5 リチウム同位体分離実験

3.5.1 用意するもの

1) 装 置

高圧定量ポンプ、圧力計

フラクションコレクター

原子吸光分光光度計　ANA-182F

表面電離型質量分析計　MAT261

2) 器 具

イオン交換カラム（内径 10mm×1000mm）

イオン交換樹脂　（AG MP50）
高圧テフロンバルブ
テフロンチューブ　外径 φ2mm
PP チューブ　φ16mm　200 本
ビーカー　100ml、200ml、1 l
メスフラスコ　500ml
マイクロピペット　0.1～10μl、　100～1000μl
ポリビン　50ml　 20 個
白金線
レニウムフィラメントユニット

3) 薬 品
酢酸リチウム、　酢酸カリウム、　塩酸、　ヨウ化水素酸、

3.5.2　実験手順（簡易）

a. イオン交換樹脂のカラムへの充填
b. イオン交換樹脂を詰めたカラムの活性化及び洗浄
c. イオン交換カラムを H^+型にする。
実習時間の都合で、イオン交換カラム（内径 10mm×1000mm）に陽イオン交換樹脂 AG MP-50 を充填し、樹脂の H^+型への転換まで既に担当者が行っている。
d. 試料溶液、溶離液の調製　（必要な試薬を準備する）
0.5N 酢酸リチウム溶液の作成
0.2N 酢酸カリウム溶液の作成
リチウム標準溶液の調製（検量線作成用）
カリウム標準溶液の調製（検量線作成用）
e. クロマトグラフィー操作（イオン交換樹脂へリチウム負荷及び溶離）
クロマトグラフィー実験の部品をテフロンチューブで接続
（高圧定量ポンプ－圧力計－カラム－テフロンバルブ－フラクションコレクター）
試料溶液の導入（リチウム吸着帯の形成）
溶離液を通液してリチウム吸着帯の移動
白金線を用いて流出液中のリチウムの有無を調べる（炎色反応）
f. フラクションコレクターによる試料採取
各 PP チューブ 100 本の重さを計ってセットする。
g. リチウムの濃度分析（試料の希釈を含む）
各フラクションの試料を希釈して濃度分析用試料を作成
h. 質量分析用試料調製
試料を一定量とり、ヨウ化水素酸を加えてヨウ化物リチウムとする。（化学形の転換）

i. 同位体比分析

海水中のウランの同位体比を測定する。

表面電離型質量分析計 MAT261 で各フラクション試料のリチウム同位体比を測定する。

3.5.3 実験操作手順（詳細）

a. イオン交換樹脂のカラムへの充填

イオン交換カラム（内径 10mm×1000mm）に陽イオン交換樹脂 AG MP-50 を充填する操作手順は、以下の通りである。カラムの下部にあるテフロンバルブを閉じ、純水をカラムの半分程度まで張る。100mL のビーカーにイオン交換樹脂を適当量とる。これに純水を入れペースト状にする。スポイトを使い、イオン交換樹脂を少しずつカラムに充填する。最上部まで詰めたら、暫く放置しイオン樹脂を沈降させる。カラム上部から注射器とゴムチューブを用いて、上部に分離した水を抜く。その後、スポイトを用いてイオン交換樹脂を再度詰める。これを繰り返して、カラム最上部までイオン交換樹脂を充填する。

b. イオン交換樹脂を詰めたカラムの活性化及び洗浄

水酸化ナトリウムを 20g 秤量し、純水 500mL に溶解する（1N NaOH 水溶液の作成)。高圧ポンプ（定流量ポンプ）の流量を 10mL/min に設定する。1N NaOH 水溶液を 40 分間流す（計 400mL 樹脂容量の 5 倍)。次に、濃塩酸（12N）を 40mL 取り、500mL に希釈する（1N HCl 水溶液の作成)。高圧ポンプ（定流量ポンプ）の流量を 10mL/min に設定する。1N HCl 水溶液を 40 分間流す（計 400mL 樹脂容量の 5 倍)。

(厳密にはこの操作を 2～3 回繰り返す。)

次に、ビーカーに純水を 1000mL 取り、高圧ポンプ（定流量ポンプ）の流量を 10mL/min に設定して、純水を 40～60 分流す（計 400～600mL)。このとき時々出口の流出液の pH を pH 試験紙により測定する。中性になったらポンプを止めて終了となる。

c. イオン交換カラムを H^+型にする。

前操作の作業において既に H^+型になっているので、この作業は省略する。

d. 試料溶液、溶離液、の調整及びリチウム吸着帯の形成

0.5M 酢酸リチウム水溶液を作成して、カラムにリチウム吸着帯を形成させる。操作手順は、酢酸リチウム 4.95g を 150mL の純水に溶解して、ポンプ流量 8mL/min で、15 分間、120mL 流す。

0.4M 酢酸カリウム水溶液の作成は、**39.2g** の酢酸カリウムを純水に溶解し全体を 1000mL にする。

e. クロマトグラフィー操作（イオン交換樹脂へリチウム負荷及び溶離）

イオン交換カラムにリチウムを負荷して吸着帯を生成させ、次に **0.4M** 酢酸カリウム水溶液で溶離展開する。このとき、流速は 9mL/min に設定する。この作業に必要な時間は、展開する吸着容量に依存する。AG MP-50 樹脂の場合では、リチウムが吸着してから全て溶離するまでに **350mL** 要することから、約 **40 分**である。

f. フラクションコレクターによる試料採取

フラクションコレクターに、あらかじめ 1 から 100 までの番号を記入した PP チューブ（プラ試験管）を 100 本セットする。このとき、各 PP チューブの重量を測定する。採取モードは「シンプル」に設定、待ち時間は 0 で、フラクションモードは「タイム」に、また、試料採取のインターバルは **30 秒**に設定する。さらに、プラ試験管の本数を 150 本以上に設定しておく。リチウムを交換カラムに負荷後、直に酢酸カリウム水溶液でリチウムを溶離展開するのであるが、このとき初期流出の **50mL** 分は、メスシリンダーで別取りする。その後、フラクションコレクターを作動させて、流出液をフラクションコレクターで分別採取する。分別された採取されたプラ試験管の重量を測定し、そのプラ試験管の重量を差し引いて、正味液量の重さを計算する。クロマトグラフィーの終点（イオン交換樹脂からのリチウムの全溶離）を見つけるために、白金線を用いた炎色反応で確認する。つまり、流出液の一部を白金線につけ、バーナーで加熱すると、リチウムイオンの有無が分かる。極微量存在するとバーナーの炎が赤くなる。（原子吸光分光光度計のバーナーを用いる）
この作業に要する時間は、前作業のクロマトグラフィーの操作と平行しているが、一部プラ試験管の重量測定を、クロマト操作終了後に行う必要があるので、クロマトグラフィー操作に加算する時間として約 **30 分**くらいである。

g. リチウムの濃度分析（試料の希釈を含む）

（先ず、標準試料の作成をする。原子吸光用標準溶液（1000ppm）から、0.5、1、2、3、5ppm の溶液を作る。100mL のポリプロピレン製びんに 99.996g の超純水をいれ、50 μL、100 μL、 200 μL、 300 μL、および 500 μL のリチウム標準溶液を入れた後、超純水をピペットで加えて 100.000g にする。また、カリウムも同様に作る。）採取試料の濃度は **0.4M** であるはずなので、これを 4ppm 程度に希釈して原子吸光分析用の試料を作成する。従って、約 666 倍に希釈する。100mL のメスフラスコに純水を 90mL 入れ、採取試料から **150 μL** の液をピペットで採取し、メスフラスコに加えて、更に純水を入れて 100mL とする。これを、50mL のポリビンに移し変えて、原子吸光分析用の試料とする。

希釈後の試料は原子吸光分光分析計を用いて炎光分析で濃度分析を行う。その装置の操作手順を以下に示す。

1) 室内のドラフトを ON にする。
2) 分析計のメインスイッチ ON

3) コンプレッサーのスイッチ ON
4) アセチレンのボンベのバルブを開く
5) バーナーの点火
6) 5ppm の標準溶液を用いて発光強度が最大になる波長を合わせる
リチウムの発光線：670.8nm
7) 装置が安定化するまで待つ（30～60 分）
8) 標準溶液の測定（検量線の作成）
9) 希釈済み試料の測定
10) 標準試料の測定（安定性の確認）
装置の詳細取扱には「取扱説明書」を参照する。

h. 質量分析用試料調整

フラクション試料からリチウム量として 100μg を採取して、5mL のスクリュー菅に入れる。これにヨウ化水素酸を 50μL 加える。次にホットプレート上で蒸発乾固させる。このとき、ホットプレート上の温度は 100～150℃位にして、試料を沸騰させないようにゆっくり蒸発乾固させ、(乾固したら純水を 100μL とヨウ化水素酸を 10μg 加えてもう一度蒸発乾固させ、過剰なヨウ素を気散させて) 試料をヨウ化リチウムに転換する。また、試料がイオン交換樹脂の不純物によって汚染されている場合は、はじめに硝酸で有機物を分解する。その後、ヨウ化水素酸を添加してリチウムをヨウ化物に転換する。

i. リチウム同位体比分析

リチウムの同位体比を測定するには、質量分析計を用いる。1 回のクロマト分離実験から測定すべき試料の数量は通常 10 点ほどである。1 回の測定に要する時間は通常 2 時間であるが、30－60 分で簡便に測定を行う。具体的測定手順は以下の通りである。

リチウム同位体比の測定は表面電離型質量分析計 MAT261 で測定する。フィラメントサポートにコの字形に貼られたレニウム製の蒸発用フィラメント中央部にマイクロピペットを用いてヨウ化リチウムをリチウム量で 2μg 塗布する。その様子を**図 3.2** に示す。フィラメントに約 1.8A 通電し、試料を乾燥させる。

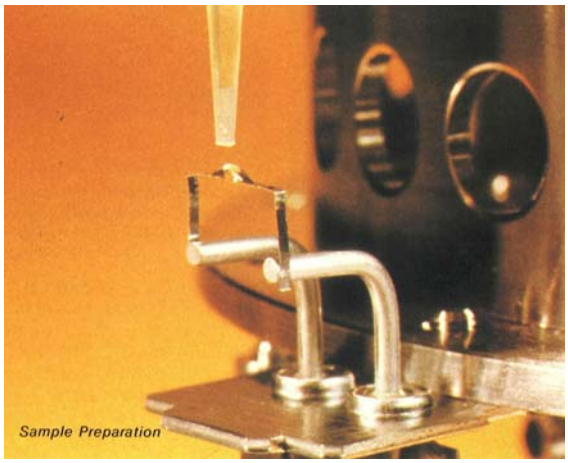


図 3.2 フィラメントに試料を塗布

このフィラメントと同型のレニウム製イオン化フィラメントをサンプルマガジンにセットする。このマガジンを質量分析計のイオン源に装着し、そこをターボ分子

ポンプで、真空にする。真空度が十分良くなったら、イオン化フィラメントにゆっくり電流をかけると、フィラメントに塗布したリチウムのイオンが検出される。昇温時間は 20 分で行なう。安定なイオンビームが得られた段階で、ファラデーカップ検出器で $^{6}Li^{+}$と $^{7}Li^{+}$を交互に磁場を走査して測定する。

3.6 結果の整理

① バーナー等で，流入空気が少ないとき炎の色は黄色であるが、完全燃焼させると青色になる。その理由について記せ。
② リチウム溶離曲線作成（クロマトグラム）及び同位体分布曲線
③ 同位体分離係数の算出
④ 1 理論段相当高さ（HETP）の算出
⑤ 分離効率を高める方法について記せ。
⑥ 天然に存在するウラン同位体存在比について記せ。たとえば、海水中のウランの同位体比はウラン鉱石中の同位体比と異なっている。その理由について記せ。

4. 再処理工程コース

4.1 本コースの目的

ウランの酸化物を溶解し、溶媒抽出によってウランを分離することによって、核燃料再処理における基本となる燃料溶解及び溶媒抽出によるウランの分離について理解を図ることを目的とする。また、ウランの化学操作を通じウランの化学の理解も図る。

4.2 酸化物溶解と溶媒抽出について

日本の現行再処理はウラン酸化物（UO_2）を硝酸で溶解し、溶解されたウランをリン酸トリブチル（TBP）にて溶媒抽出して分離している。

ウラン酸化物としては二酸化ウラン（UO_2）、三酸化ウラン（UO_3）及び八酸化三ウラン（U_3O_8）が代表的な酸化物と知られている。実験室レベルでは UO_3 と U_3O_8 が合成可能である。本コースでは U_3O_8 を用い、その溶解過程を理解する。

溶媒抽出法は固体または液体試料中の 1 種類(または 2 種類以上)の成分物質を溶媒に溶解させて分離する方法である。試料が液体の場合には、混和しない抽出溶媒を選び、目的物質と特異的に反応する物質（抽出剤）を加えることによって分離する。一般に、水－有機溶媒系の抽出を利用した分離分析法であり、抽出剤は有機溶媒に混和するものを用いる。核燃料再処理に関しては TBP がよく用いられ、プルトニウムの分離に利用される。本コースでは抽出剤としてトリ-n-オクチルホスフィンオキサイド(Tri-n-octylphosphine oxide TOPO)及びβジケトン類であるテノイルトリフルオロアセトン(Thenoyl trifluoro acetone TTA)を用いて有機溶媒としてキシレンを用いて行う。抽出された目的物質は再度、水溶液に抽出（逆抽出）され利用されるのが一般的であるため、本コースでも逆抽出を行うことで、溶媒抽出の理解を深める。

・レポート課題：U_3O_8 が硝酸に溶解する時の化学反応式を求める。また使用する抽出剤の化学式について示すこと。

4.3 実験法

事前にルツボに用意された U_3O_8 を用い、0.1M 硝酸にて計算量の液量を投入する（U_3O_8 の重量は実験を始める前に提示しておく）。ホットプレートにて加温し、その溶解過程を観察する。用意された 0.1M 硝酸溶液を用いウラン濃度を 400ppm とするように加えてウラン溶液とする。溶媒抽出実験はこの試料溶液を用いて行う。

溶媒抽出実験は 0.2M TOPO、TTA キシレン溶液を用いる。抽出する金属溶液は上記のウラン溶液とアルカリ金属からはセシウム、アルカリ土類金属からストロンチウム(1M 硝酸中 1000ppm)、希土類元素からはユーロピウム(0.5M 塩酸中 1000ppm)を対象として行う。金属溶液を 3ml 試験管に取り、TOPO 及び TTA 抽出溶媒を 3ml 加え，よく混合させ、静置する。二相が完全に分離したことを確認した後、各相を注意深くマイクロシリンジにて

2ml プラスチック容器に分取する。分取した溶液は蛍光 X 線測定装置を用いて測定する。測定が終了したウラン抽出有機相を試験管に移し、1ml のキシレンを加えたのち、1M 炭酸ナトリウム水溶液 3ml にて同様に抽出する。さらに、ウラン溶液とストロンチウム溶液を各 1.5ml 試験管に取り、TOPO 溶液にて抽出する。測定は上記の方法と同様とする。

4.4 実験レポート

・測定された蛍光 X 線の各金属に係る強度についてまとめ、ウランについて求めた検量線から抽出されたウラン濃度を算出し、抽出現象についてまとめる。また相乗効果について調べ、得られた結果について考察すること。

・1M 炭酸ナトリウム水溶液にて逆抽出した結果について、ウラン炭酸錯体について調べた結果を用いて考察すること。

4.5　実験の詳細

「全体」

1）　ピペットの安全取扱い
2）　酸化ウランの酸溶解
3）　蛍光X線測定装置を使ったウランに関する検量線作成
4）　ウランの抽出
5）　セシウムの抽出
6）　ストロンチウムの抽出
7）　ユウロピウムの抽出
8）　ウランの逆抽出

第1回　1)、2)、3）
第2回　4)、5)、6)、7)、8）

（1）ピペットの安全取扱い

目的：ピペット（エッペンドルフピペット）を使用して検量する
方法：蒸留水を 2ml 取りその重量からピペットの検量を行う。
操作：

1）ピペットを 2ml に合わせる
2）100ml のビーカーを秤に乗せ、0 g にする。
3）さらに 100ml のビーカーを用意し、に蒸留水を約 50ml 入れる。
4）秤の上部の窓を開ける。
5）蒸留水をピペットで静かに吸い上げる。
6）秤の上部から中のビーカーに静かに滴下する。
7）秤の上部の窓をしめ、秤の読みを記録する。
8）秤の読みを 0 g にする。
9）4）から繰り返して最低 5 回測定する。

平均値を求めて評価する。

平均値：

（2）酸化ウランの溶解

目的：酸化ウランの性状と酸による溶解を理解する。

方法：酸化ウランに計算量の硝酸を加え、蒸留水により希釈する。

操作：

1）ルツボに用意された酸化ウランの性状（重さと色等）を記録する。

2）GM カウンターにより放射線量と測定し、記録する。

3）計算量の硝酸をピペットにより加える。

4）ホットプレートに乗せ加温する（約 50℃）

5）溶解過程を観察する。

6）溶解したことを確認したのち、ホットプレートから用意したバットに下ろす。

7）十分冷却したことを確認した後、再度 GM カウンターにより放射線量を測定し、記録する。

8）　ルツボにて溶解したウラン溶液を一旦、100ml 程度のビーカーに移す。ルツボは蒸留水によって 3 回洗浄すること。（洗浄した蒸留水はビーカーに入れる）

9）　希釈のためにビーカーに移したウラン溶液を 100 ml のメスフラスコに移す。8）と同様にビーカーは 3 回洗浄する。メスフラスコは目印の線まで蒸留水を加えて希釈する。蓋をして確実に閉まったことを確認した後、蓋の上からウラン溶液が漏れた時のためにペーパータオルをかぶせよく撹拌する。このときのウラン濃度を計算する

酸化ウランの重さ	g

酸化ウランの性状：

硝酸の量はウランの元素量の 4 倍量の酸を消費するが、そのままでは中性(pH=7)となり加水分解してしまう。そのため、過剰の酸を入れ、全体を 0.1 mol/l とするように加える。

計算：U=238.0289、U_3O_8=842.0819、HNO_3=63.0128(60%,d=1.38)

（3）蛍光X線測定装置を使ったウランに関する検量線作成

目的：蛍光 X 線測定装置からの強度と濃度との関係を調べ、蛍光 X 線測定装置の理解を図る。(テキスト最終ページ参照)

方法：ウラン溶液のウラン濃度を変え、その時の蛍光 X 線の強度を求め、ウラン濃度に対する蛍光 X 線強度の関係を調べる。同時に Cs、Sr、Eu についても測定し、その特性 X 線スペクトルを調べる。

操作：

1）（2）で作成したウラン溶液を 200 ml 容器に移した後、ウラン溶液を 2.0、1.5 ml を取り、蛍光 X 線測定用のプラスチック容器にそれぞれ分取する。1.5 ml とった容器に同量の蒸留水を加え、濃度を 1/2 にする(溶液１)。溶液１をさらに 1 ml 取り、同様にプラスチック容器に分取する。また、1 ml とった溶液にさらに蒸留水を 1 ml 加え、濃度を 1/2 にする(溶液２)。

2）上述した方法で作成した 3 種類の溶液を蛍光 X 線測定装置でウランに関するスペクトル強度を測定する。

測定方法

・なにも乗せずに測定する
・用意された軟質ガラス瓶を乗せて測定する
・溶液を入れていないプラスチック容器を測定する
・１）で作成したサンプルについて測定する。
・用意された他の金属イオン溶液をプラスチック容器に 2 ml 入れて測定する。

スペクトルの様子のメモ

ウラン溶液の蛍光 X 線スペクトル強度

原液：(mg/dm^3)	溶液 1：(mg/dm^3)	溶液 2：(mg/dm^3)

（3）溶媒抽出実験

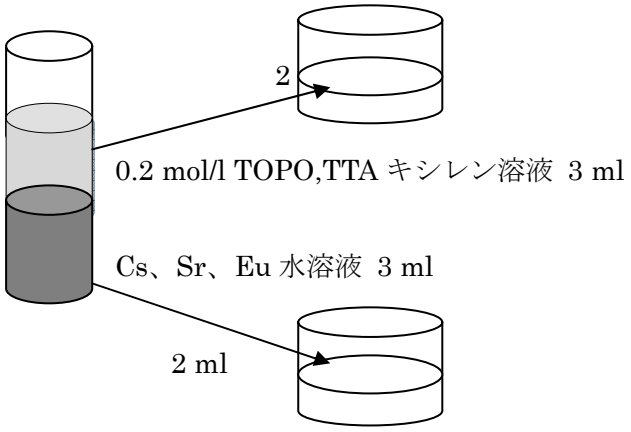
目的：TOPO 及び TTA を用いてキシレンにて溶媒抽出を行い溶媒抽出と相乗（共同）効果の理解を図る。

方法：TOPO 及び TTA をキシレンに溶かした溶液を用い、硝酸ウラニル溶液及び Cs、Sr、Eu 溶液について溶媒抽出を行い。水溶液層及び有機層の特定 X 線スペクトルから抽出現象を調べる。また、ウラニル溶液を TOPO 及び TTA に抽出し、更に TOPO と TTA が共存した抽出を行い、比較する。さらに、抽出された有機相から炭酸アンモニウムで逆抽出し、水溶液にウランが抽出されたことを確認する。

操作：

1）0.1mol/l の硝酸に溶かした Cs、Sr、Eu 水溶液を 3 ml 遠沈管に取り、さらに TOPO,TTA 各 0.2 mol/l が入ったキシレン溶液を 3 ml 加える。遠沈管のふたを閉め、上部からキムワイプをかぶせて十分に振る。遠沈管を試験管たてに静置する。キムワイプをかぶせたまま栓を少し緩め、内圧を常圧にする。

2）溶液が完全に 2 相になるまで静置し、溶液が 2 相になったら、栓をあけ、上相のキシレン溶液をマイクロピペットにより 2 ml 取り、蛍光 X 線測定用のカップに移す。さらに、下相の水溶液をマイクロピペットにより 2 ml 取り、同様に蛍光 X 線測定用のカップに移す。（Cs、Sr、Eu が入った溶液の溶媒抽出は各自行うこと）

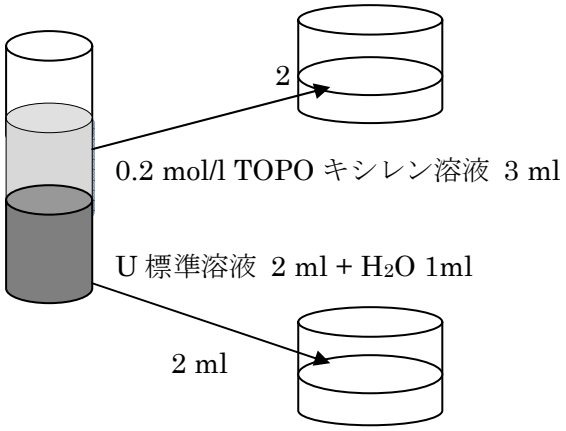


有機相及び水相の色：

考察：

Metal	Cs	Sr	Eu
Org. Intensity			
Aqua. Intensity			

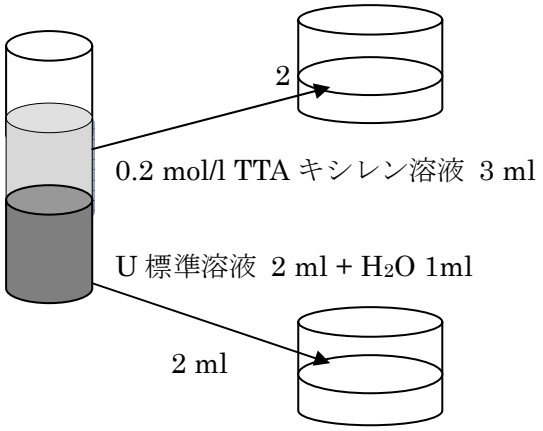
3）（2）で作った溶液を 2 ml 遠沈管に取り、さらに蒸留水を 1ml 加える。これに、TOPO が入ったキシレン溶液を 3ml 加える。1）同様に遠沈管を振り、静置する。2）と同様にしてサンプルを作成する。



有機相及び水相の色： 考察：

Metal	U	
Org. Intensity		
Aqua. Intensity		

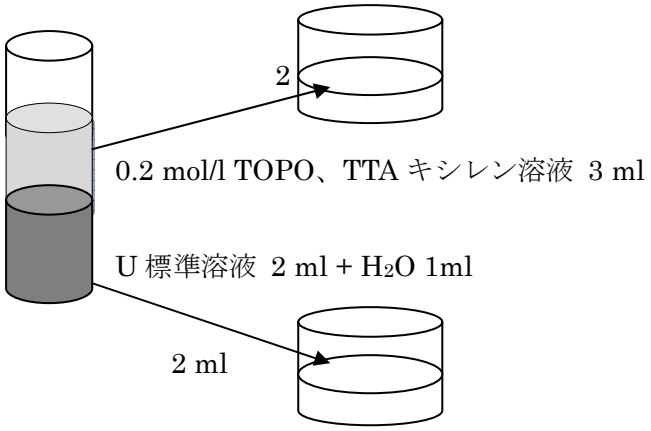
4） 3）と同様にして TTA が入ったキシレン溶液を使い同様にしてサンプルを作成する。



有機相及び水相の色： 考察：

Metal	U	
Org. Intensity		
Aqua. Intensity		

５）さらに、３）と同様にして TOPO,TTA が入ったキシレン溶液を使い同様にしてサンプルを作成する。



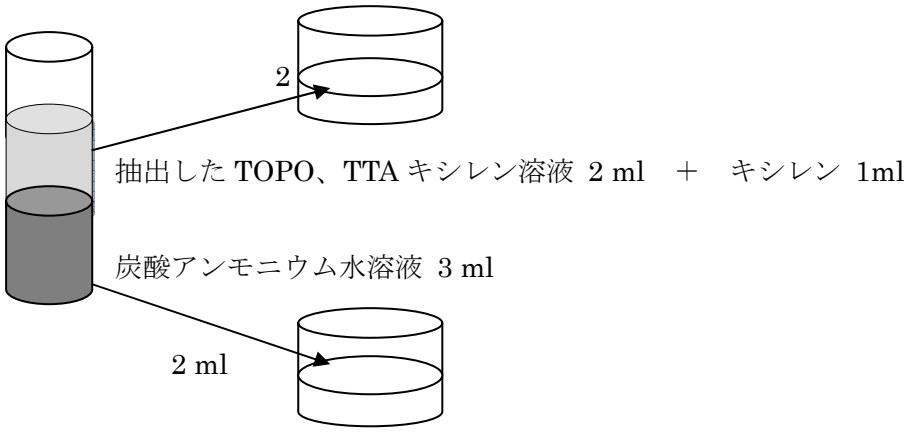
有機相及び水相の色： 考察：

Metal	U	
Org. Intensity		
Aqua. Intensity		

５）上記２）から５）までのサンプルを蛍光 X 線測定を行い、それぞれの金属の蛍光強度を測定する。先に求めた検量線からウランの濃度を算出し、分配比を求める。

７） 5）で作った有機溶媒相を遠沈管に移し、カップにキシレンを 1ml 入れ遠沈管に入れる（合計有機溶媒は 3 ml)。ここに、炭酸アンモニウム水溶液を 3 ml 加え１）及び２）の操作を行い、サンプルを作成する。

８） 7）で作成されたサンプルを蛍光 X 線測定を行い、ウランの強度を測定する。



有機相及び水相の色： 考察：

Metal	U	
Org. Intensity		
Aqua. Intensity		

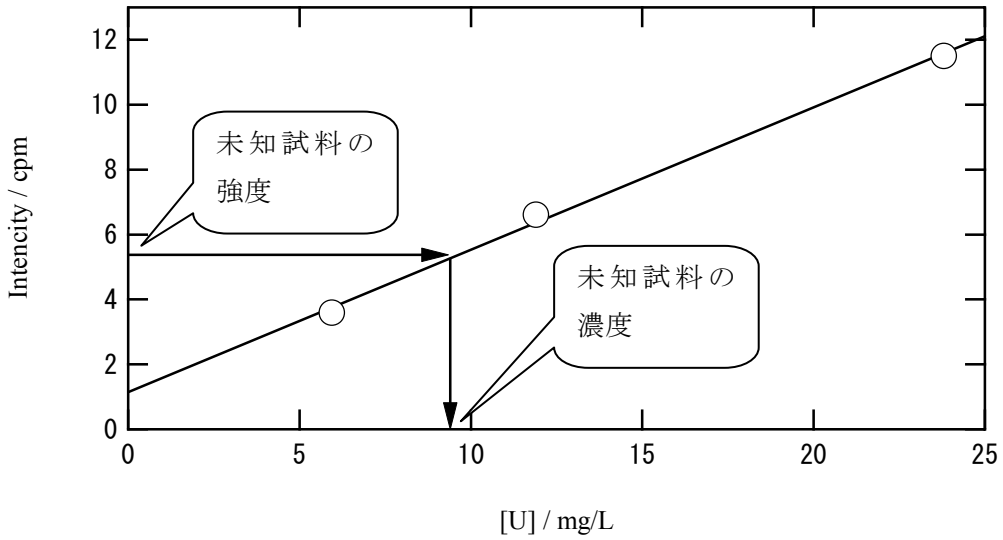
TOPO 及び TTA 単独抽出と混合抽出の場合の違いを示し、共同効果を考察する。
逆抽出についてその結果を示す。

抽出実験におけるデータ処理について

定量分析の為の関係線（検量線法、標準添加法および内標準法がある）

蛍光 X 線強度から物質の濃度の算出方法―検量線の作成と濃度決定―

検量線の作成：濃度が既知の試料溶液を予め調整し、その標準溶液列を用いて蛍光 X 線強度と濃度との関係線を作成する。未知試料を同様に処理して得られた測定強度から未知の濃度を求める（定量を行う)。



本来は切片を持たないことから、切片を持った場合、考察が必要となる。

分配比

抽出百分率（抽出率）を E, wo：有機相に抽出された目的成分、w：試料水中の全目的成分とすると

E(%) = (wo/w)x100　となる。

また分配比を D、Vo を有機相の体積、Vw を水相の体積とする。Cs,o を有機相中の溶質 s の濃度、Cs,w を水相中の溶質 s の濃度とすると

D ≡ Cs,o/Cs,w = (wo/ Vo)/((w − wo)/ Vw)

5. 廃棄物処理コース

5.1 本コースの目的

本コースでは、実験で発生するウラン廃液を精製処理する方法を実際に体験し、廃液処理の重要さと放射性廃棄物の処理法、特に核種分離法の重要性の理解を図る。また、沈殿法、溶媒抽出法について学んで来たが、ここではイオン交換法を学ぶことも目的の一つにしている

5.2 イオン交換によるウランの精製法

核種分離に用いるイオン交換法は陰イオン交換樹脂を用いる。金属イオンは溶液中で陰イオンと錯形成する。金属イオンに錯形成する陰イオンの数は酸の濃度（正確には水溶液中の陰イオン濃度）によって決まり、条件によっては、全体で電荷がマイナスになる状態になる。陰イオン交換樹脂による核種分離技術では塩酸溶液を用いるのが一般的である。陰イオン交換樹脂への各元素の吸着特性については分配係数としてまとめられている。分配係数は樹脂中のイオン濃度と溶液中のイオン濃度の比で定義されており、分配係数が大きなものほど樹脂に吸着する。強塩基性陰イオン交換樹脂を用いたときの分配係数を図 5-1 に示す。

分配係数を見ると 6 価のウラン(ウラニルイオン：UO_2^{2-})は塩酸濃度の増加とともに大きくなる傾向があり、濃い塩酸領域では陰イオン交換樹脂によく吸着することが分る。ところで、代表的な核分裂生成物には、アルカリ金属元素の Cs, アルカリ土類元素の Sr, Ba、希土類元素があるが、これらの元素はいずれも陰イオン交換樹脂では吸着しないことが図より見て取れる。したがって、ウランとこれらの元素が混ざっている溶液があるときは、ウランが良く吸着する条件でウランを吸着させて、吸着が維持できるような濃い塩酸で洗い流すことにより、これら核分裂生成物元素のみを洗い流すことが可能であり、またウランは薄い塩酸溶液では分配係数が小さくなることから樹脂から外して回収可能であることが分る。

・レポート課題：代表的な核分裂生成物の一つとして白金族元素である Pd があるが、Pd と U(VI)が含まれている溶液を陰イオン交換樹脂で互いに分離する方法を図 5-1 の分配係数から議論せよ。

また、クロマトグラフィを実施すると、図 5-2 のような曲線が得られるが、クロマトグラムを用いた分配係数の評価では、その定義から

$$D = (V_r - V_0)/V_s$$

であらわされる。D は分配係数で V_r, V_0 は図中に示してあり、V_rはピーク位置が現れるのに必要な溶離液量、V_0 はデッドボリュームでカラム中に樹脂が充填されていない空間の体積にあたる。したがって、V_r- V_0 は溶液中に含まれる目的元素イオンの溶離に必要な溶液量を意味している。V_s は樹脂体積である。したがって、分配係数が分かるとカラムを用いたクロマトグラフィ試験の結果を予め予想することが可能となる。

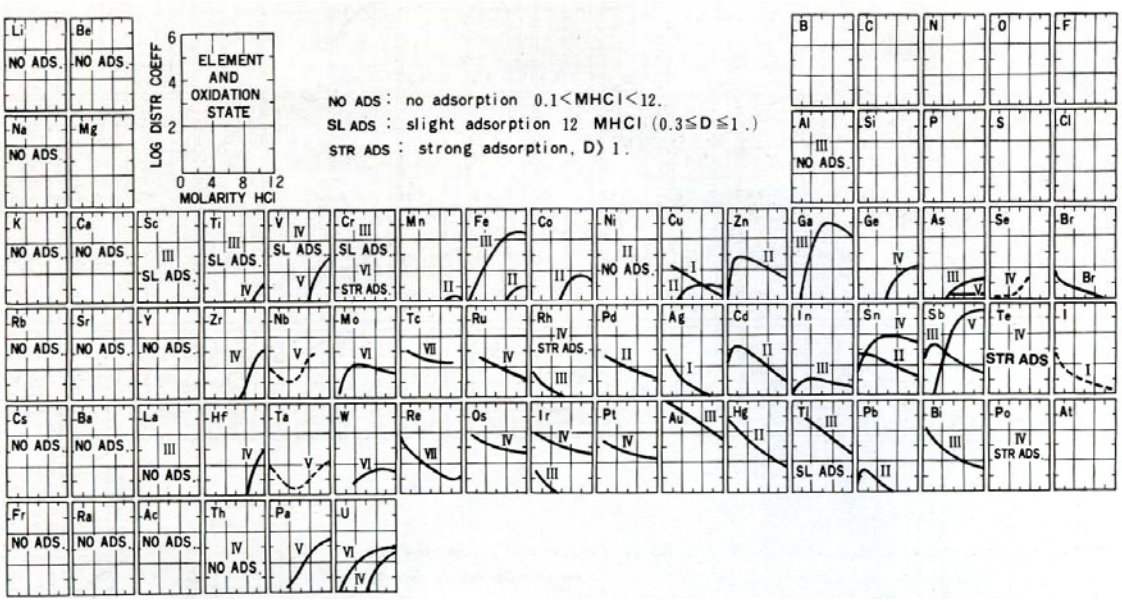


図 5-1 塩酸溶液での強塩基性陰イオン交換樹脂への核種元素の分配係数

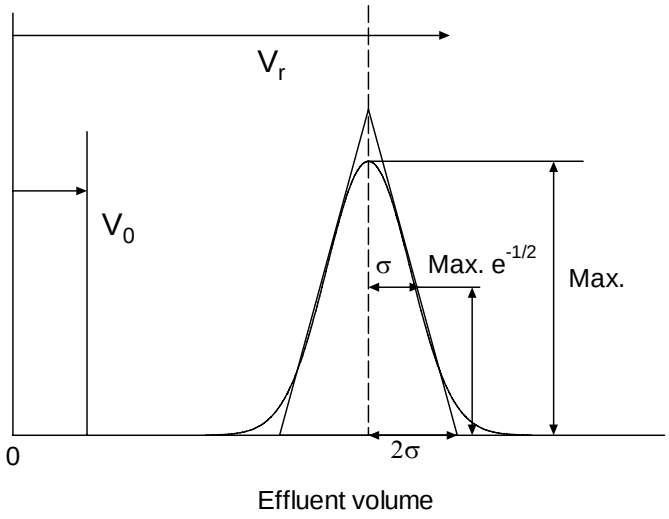


図 5-2 クロマトグラフィ試験による溶離結果模擬図

5.3 実験手法

5.3.1 バッチ試験によるウランの分配係数評価

(1) 塩酸濃度の異なるウラン溶液(U(VI))をあらかじめ準備してある。この溶液から各々 50μl 量り取り、マイラー膜状で蒸発乾固させる。(試料 A)

(2)塩酸濃度の異なるウラン溶液からそれぞれ 500μl 試料を取り、サンプル瓶に移す。(試料

B)
(3)陰イオン交換樹脂を正確に 100mg 秤量して、試料 B に入れる。この試料を時々振りながら約 1 時間置く。(試料 B1)

(4)試料 B1 から 50μl 取り出し、マイラー膜状で蒸発乾固させる。(試料 B2)

(5)試料 A, 試料 B2 を蛍光 X 線でウラン量を評価し、分配係数を求めなさい。
分配係数は D = (樹脂中に吸着したウラン量/樹脂の体積)
/(試料 B1 溶液中に含まれるウラン量/溶液の体積)
であらわされる。なお、樹脂の単位質量当たりの体積は 1.24ml/g である。

また、得られた分配係数から、ウランの溶離に必要な塩酸溶液の量を塩酸溶液が 6M, 9M の時を例にして求めなさい。なお、陰イオン交換樹脂のカラム体積は 4ml としてその 70%がデッドボリュームとする。

5.3.2 カラムを用いたウラン精製・回収試験

(1) ウランと模擬核分裂生成物元素(Sr, Cs, Eu)の混合溶液(6M 塩酸)(溶液 A)に含まれるウラン、Sr, Cs, Eu の濃度を蛍光 X 線装置を用いて評価する。
蛍光 X 線の測定法は、試料溶液から 200μl 取り、マイラー膜上で蒸発乾固させたものを用いて行なう。
溶液濃度は蛍光 X 線でのカウント数/ml で良い。

(2) 陰イオン交換樹脂を充填したカラム(陰イオン交換樹脂のカラム体積：4ml)に 6M 塩酸を 20ml ほど流し、コンディショニングを行なう。

(3) 樹脂上面の塩酸がなくなるぎりぎりまで（1mm 以下）待って、試料溶液を 0.5ml 着点させる。着点と同時にカラム下部から溶離する液の回収を始める。

(4) 樹脂に吸着したウランのバンドを見ながら、6M 塩酸を流し、ウランのバンドがカラム下部に来る前に止める。このときに流した溶液量をメスシリンダーを用いて計量し、記録する。

(5) 溶液を 1M 塩酸に切り替えてウランのバンドを全て流しだす。このときに流した溶液量を記録する。(溶液 B)

(6). 溶液 B 中の元素濃度を蛍光 X 線で評価する。

溶液 A と溶液 B を比較し、除染係数を評価すると共に、溶液 B 中のウランの純度も評価しなさい。また、ウランの回収率も求めなさい。

(4)実験レポート

・実験目的を記述すること。

・実験手順についてまとめること。

・実験手順の中に記してある課題を検討すること。

・実験結果をまとめてイオン交換による廃棄物処理について議論すること。

・最後に、実験の感想も書いてください。

なお、実験データについては誤差もあるので誤差についても議論してください。

6. 補足

6.1 放射線計測における誤差及び誤差の伝播

放射壊変は、崩壊する個々の原子が互いに独立して偶発的に崩壊するものであり、その確率分布は最も典型的なポアソン分布となる。したがって、ある一定の時間 t で計数値が N であった場合は、分散を σ^2 とすると、

$$\sigma^2 = N \tag{6.1}$$

となる。分散の平方根が標準偏差であり、差を標準偏差であらわすと、

$$N \pm \sqrt{N} \tag{6.2}$$

が総計数を誤差つきで表した表現となる。また、この時の計数率は

$$(N \pm \sqrt{N})/t \tag{6.3}$$

となる。放射線測定では計測時間 t を注意する必用が有る。つまり、放射線計測では、測定器の不感時間が存在するため、実時間と実際に計測している時間が異なるため、注意が必要である。

ところで測定で得られる値は必ずしも直接的な計測で得られるわけではない。得たい値が z がある測定可能な量 $x, y, \cdots$ の関数であるとき、即ち

$$z = \varphi(x, y, \cdots) \tag{6.4}$$

であるとき、分散は

$$\sigma_z^2 = \left(\frac{\partial \varphi}{\partial x}\right)_0^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial \varphi}{\partial y}\right)_0^2 \sigma_y^2 + \cdots, \tag{6.5}$$

測定値 x,y の分散が z の分散に伝播することが知られており、この式を誤差の伝播式と呼ぶ。なお、$\left(\partial\varphi/\partial x\right)_0^2$ などは測定値 x の平均 $\bar{x}$ における偏微分係数である。誤差の伝播式は、系統誤差が無視できるほど小さく、測定量の誤差が互いに独立でなければ適用できない。ここで、四則演算の簡単な誤差の伝播についてまとめる。

$$z = ax \pm by, \qquad \sigma_z^2 = (a^2\sigma_x^2 + b^2\sigma_y^2),$$

$$z = axy, \qquad \frac{\sigma_z^2}{z^2} = \frac{\sigma_x^2}{x^2} + \frac{\sigma_y^2}{y^2},$$

$$z = a\frac{x}{y}, \qquad \frac{\sigma_z^2}{z^2} = \frac{\sigma_x^2}{x^2} + \frac{\sigma_y^2}{y^2},$$

添付３　「実践的教育実験コース　放射化学及び放射線測定に関する教育実験　実験テキスト」

実践的教育実験コース

放射化学及び放射線測定に関する教育実験

実験テキスト

【 目 次 】

放射線計測実験
GM 計数装置の取り扱い……1
課題１．プラトー特性……1
課題２．二線源法による分解時間の測定……5
Hp-Ge 半導体検出器の取り扱い……9
放射化学実験
沈殿分離法による ^{90}Sr と ^{137}Cs の核種分離……22
参考図書……28

GM 計数装置の取り扱い　課題 1.　プラトー特性

目的

GM 計数管の電位－計数率曲線を測定し、プラトー特性（プラトー幅と勾配）を評価すると共に、使用電圧を決定する。また、バックグラウンド計数を測定し線源の正味の計数率を求める。

原理

・GM 計数管

GM (Geiger-Müller) 計数管は、放射線と物質の相互作用により生成した電離電荷を電極に収集して検出するガス入り検出器の一種である。GM 計数管の模式図を図 1 に示す。入射放射線が検出器内に封入されたガスと相互作用することによりイオン対が生成し、電極間に印加された電場により陽イオンは陰極へ、電子は陽極へ引き寄せられる。電極間に高電圧が印加された条件では、電子は加速され運動エネルギーを得るため、次々と封入ガスを電離（電子なだれ）して最終的に放電状態を引き起こす（ガイガー放電)。また、ガイガー放電中は他の放射線が入射しても検出できない。従って、ガイガー放電を停止するために、不活性ガス（アルゴン、ヘリウム、ネオン）に有機物（エタノール、ギ酸エチル、ブタノール）やハロゲン（塩素や臭素）が混合されたものを封入ガスとして用いる。この有機物やハロゲンを消滅ガス（クエンチングガス）と呼び、消滅ガスの分解により放電を停止する仕組みを自己消滅型という。これに対し、外部信号により印加電圧を下げて放電を停止させる仕組みを外部消滅型という。GM 計数管の出力パルス信号は、入射放射線の種類やエネルギーに依存せずほぼ一定の波高値をもつ。

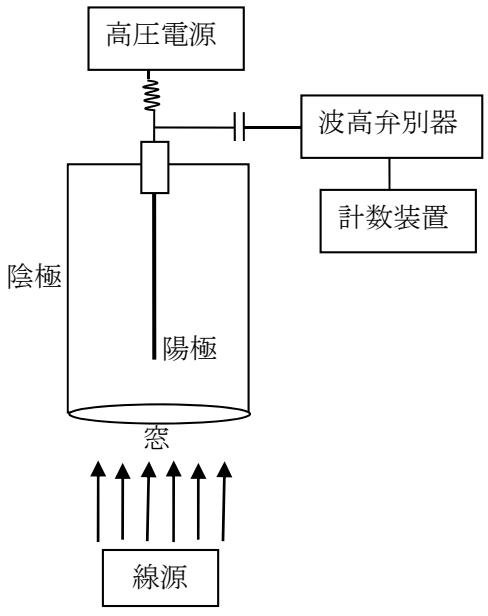


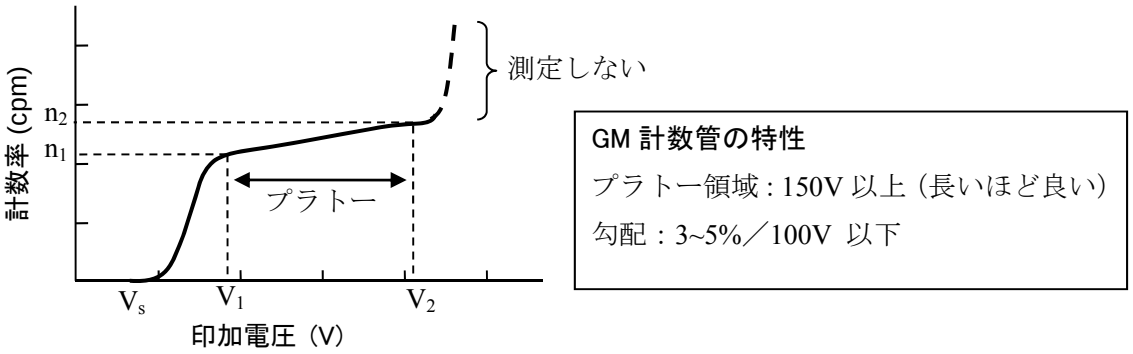
図 1　GM 計数装置の模式図

・プラトー特性

GM 計数管は使用状況（消滅ガスの消耗など）により特性が徐々に変化するため、定期的に印加電圧と計数率の関係を調べて特性の良否を判断する必要がある。GM 計数管の電圧－計数率曲線の例を図 2 に示す。計数率とは、単位時間当たりの計数値であり、cpm

（counts per minute）や cps（counts per second）を単位として表す。計数装置が動作し始める電圧を開始電圧（V_s）という。計数率がほぼ一定となる領域（V_1~V_2）をプラトー(plateau)と呼び、その電圧幅（V_2-V_1）は一般に 200V 以上となる。また、印加電圧が V_2 を超えると連続放電が起こるため、V_2 以上の印加電圧での使用は計数管の寿命を短くする。実際の使用電圧は、プラトー領域の 1/4～1/3（低電圧側）とする。プラトー勾配は印加電圧 100V あたりの計数率の増加率(%)で示され、勾配は小さいほうが望ましく、一般に 3%以下となる。

$$\text{プラトー勾配}=\left(\frac{\Delta n}{n}\Big/\frac{\Delta V}{100}\right)\times 100=\frac{n_2-n_1}{n_1}\times\frac{100}{V_2-V_1}\times 100\,(\%)$$



GM 計数管の特性
プラトー領域 : 150V 以上（長いほど良い）
勾配：3~5%／100V 以下

図 2　GM 計数管の電圧－計数率特性

方法

※GM 計数装置を使用する際には、使用手順書の注意事項を遵守すること。

1. 計数装置の電源スイッチが OFF であることを確認し、電源ケーブルをコンセントに挿入する。
2. 高電圧調整用ツマミ（HV）のロックをはずし、ツマミが完全に左に回っていることを確認する（最低値＝0V）。
3. 電源を入れる。
4. 手順書に従い GM 計数管の測定モードに設定する。
5. 試料台の適当な位置に線源を置く（教員の指示を受けること）
6. 高電圧調整用ツマミを緩やかに回して印加電圧を設定し、1 分間測定する。
7. 開始電圧 V_s を超え、計数率の変化が激しい領域は印加電圧を細かく設定し、電圧－計数率曲線が滑らかに描けるようにデータを取得する。プラトー領域を過ぎ、計数率が急激に増加する傾向が見られたら直ちに測定を中止し、**電圧を下げる**こと。最大電圧以上に設定しない。

結果のまとめ方

測定条件

GM 計数管：No.＿＿＿＿

計数装置：＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿

使用線源：＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿

試料台の位置：＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿

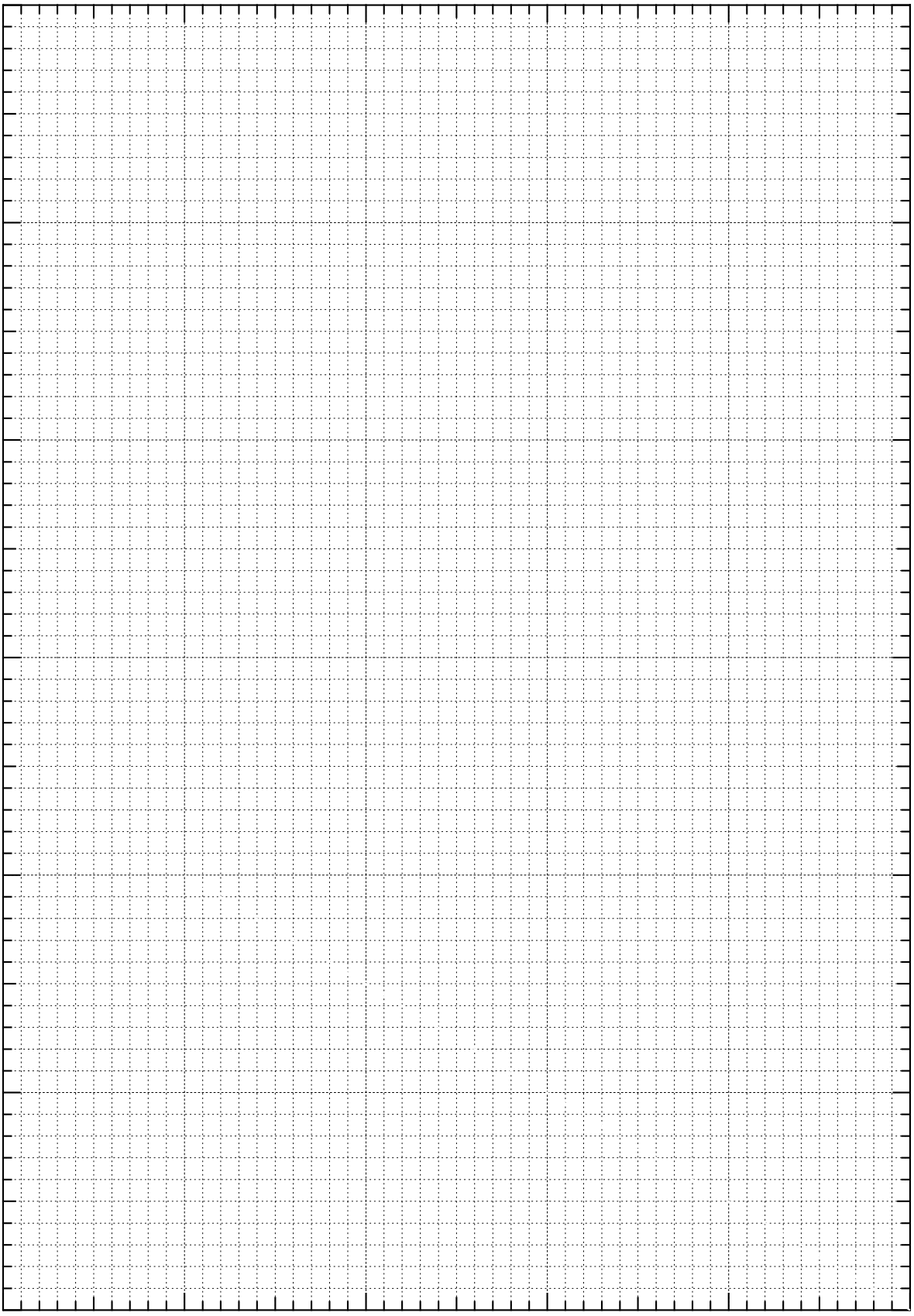
測定データを以下のような表にまとめ、電圧－計数率特性を図示せよ。図示する際には、各測定点における誤差棒を示し、統計誤差を考慮して滑らかな曲線を描くこと。

また、測定結果から使用した GM 計数管のプラトー領域、勾配、使用電圧を報告せよ。

表 I　GM 計数管の各印加電圧における計数率の測定結果

印加電圧 (V)	測定時間 t (min)	計数値 N (counts)	計数率 n (cpm)	標準偏差 σ *

*：標準偏差 σ は次式により求める　$\sigma = \pm \frac{\sqrt{N}}{t}$



GM 計数装置の取り扱い　課題２　二線源法による分解時間の測定

目的

GM 計数装置で高い計数率の試料を測定する場合、分解時間に起因する「数え落とし」が生じる。真の計数率を求めるためには数え落としの補正を行わなければならず、装置に固有の分解時間を知る必要がある。ここでは、二線源法により分解時間を決定し、GM 計数装置の数え落としについて理解する。

原理

GM 計数管に放射線が入射すると管内でイオン対を生じ、電子なだれを起こして１個の電圧パルスとしてカウントされる。その間、他の放射線が入射しても検出することができない。この時間を不感時間（dead time）という。また、GM 管が再びもとの状態に戻り、次の放射線の入射によりイオン対を生じても、それを第二の電圧パルスとしてカウントできるまでには、さらに時間を要する。このように、引き続いて入射する放射線を二つ目としてカウントできるまでにかかる時間を分解時間（resolving time）という。この間に入射した放射線は数え落とされたことになる。GM 計数管は分解時間が比較的長いため、計数率の高い試料を測定する場合には、数え落としの補正が必要となる。GM 計数管の不感時間は、封入ガスの種類、圧力、管のサイズ、また印加電圧によっても変化する。一般的に、分解時間は数百 μ sec のオーダーである。

二線源法は、放射能の等しい２つの放射線源を同時に計測した場合の計数率が、個々の計数率の和よりも若干小さくなる（数え落としにより）ことを確認し、近似式を使って分解時間を求める方法である。

数え落としの無い真の計数率を n_0、測定した計数率を n とすると、分解時間 τ との関係は次式で表される。

$$n_0 = \frac{n}{1 - n\tau} \tag{1}$$

(1)式において、$n\tau < 1$ であると次式に近似できる。

$$n_0 = n(1 + n\tau) = n + n^2\tau \tag{2}$$

二線源法による測定で、個々の線源の測定計数率をそれぞれ n_1, n_2、同時に測定した計数率を n_{12}、バックグラウンド計数率を n_{BG} とすると、τ を次式により近似的に求めることができる。

$$\tau = \frac{n_1 + n_2 - n_{12} - n_{BG}}{n_{12}^2 - n_1^2 - n_2^2} \tag{3}$$

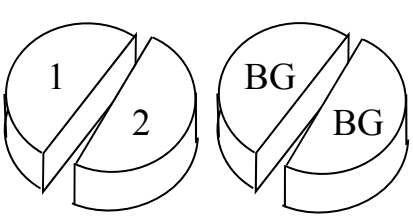
ここで、すべての測定において測定時間 t（秒）が同じ場合、(3)式は計数値 N を用いて次式により表される。

$$\tau = \frac{N_1 + N_2 - N_{12} - N_{BG}}{N_{12}^2 - N_1^2 - N_2^2} \times t \qquad (4)$$

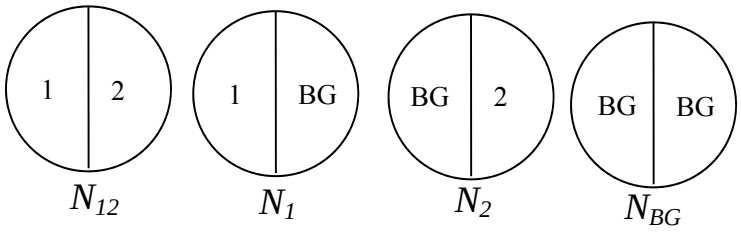
方法

1．装置に電源を入れ、測定可能な状態に準備する。計数装置番号と印加電圧、棚板の位置、線源番号を記録しておく。

2．線源とその配置は下記のようにする。



線源（^{90}Sr-^{90}Y）とダミー線源



測定時の線源の配置

3．線源は棚板の最上段にセットする。

4．線源１と２を同時に 5 分間測定する。⇒N_{12}

5．線源１とダミー線源で 5 分間測定する。⇒N_1

6．線源２とダミー線源で 5 分間測定する。⇒N_2

7．ダミー線源のみで 5 分間測定する。⇒N_{BG}

8．手順４～７を繰り返し行い、計３回の測定を行う。

9．各測定値から分解時間を決める。

結果と考察について

・測定結果は下記のような表にまとめる。（計数率ではなく計数値を記入すること）

・測定ごとに求めた分解時間 τ_1～τ_3 の平均を τ_A、また各計数値の平均値から求めた分解時間を τ_B とし、それぞれ誤差をつけて評価すること。

・決定した分解時間の値について考察せよ。τ_A と τ_B のどちらを採用するか検討せよ。

表１　測定計数(counts)及び分解時間

	N_{12}	N_1	N_2	N_{BG}	τ（μsec）	σ
1					τ_1	$\sigma_{\tau 1}$
2					τ_2	$\sigma_{\tau 2}$
3					τ_3	$\sigma_{\tau 3}$
平均	$\overline{N_{12}}$	$\overline{N_1}$	$\overline{N_2}$	$\overline{N_{BG}}$	τ_A	σ_A
σ	σ_{12}	σ_1	σ_2	σ_{BG}	τ_B	σ_B

誤差（σ）の求め方

計数値の誤差	基本式 1	$N \pm \sqrt{N}$，$tN \pm t\sqrt{N}$ （t は定数）
和と差の誤差	基本式 2	$(A+B) \pm \sqrt{\sigma_A^2 + \sigma_B^2}$
$\frac{A}{B}$ の誤差	基本式 3	$\left(\frac{A}{B}\right) \pm \left(\frac{A}{B}\right)\sqrt{\left(\frac{\sigma_A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_B}{B}\right)^2}$
A×B の誤差	基本式 4	$(A \times B) \pm (A \times B)\sqrt{\left(\frac{\sigma_A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_B}{B}\right)^2}$

平均値とその誤差（σ_{12}, σ_1, σ_2, σ_{BG}）

$$\overline{N} = \frac{1}{3}\sum_{i=1}^{3} N \qquad \text{誤差} \sigma = \frac{1}{3}\sqrt{\sum_{i=1}^{3} N}$$

τ の誤差（$\sigma_{\tau 1}, \sigma_{\tau 2}, \sigma_{\tau 3}$）

$$\tau = \frac{N_1 + N_2 - N_{12} - N_b}{N_{12}^2 - N_1^2 - N_2^2} \times t$$

τ の誤差　$\sigma_\tau = \tau \sqrt{\dfrac{N_1 + N_2 + N_{12} + N_b}{\left(N_1 + N_2 - N_{12} - N_b\right)^2} + \dfrac{2\left(N_{12}^3 + N_1^3 + N_2^3\right)}{\left(N_{12}^2 - N_1^2 - N_2^2\right)^2}}$

τ_B の誤差

$$\tau_B = \frac{\overline{N_1} + \overline{N_2} - \overline{N_{12}} - \overline{N_{BG}}}{\overline{N_{12}}^2 - \overline{N_1}^2 - \overline{N_2}^2} \times t$$

$$\sigma_B = \tau_B \sqrt{\frac{\sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \sigma_{12}^2 + \sigma_{BG}^2}{\left(\overline{N_1} + \overline{N_2} - \overline{N_{12}} - \overline{N_{BG}}\right)^2} + \frac{2\left\{\left(\overline{N_{12}}\sigma_{12}\right)^2 + \left(\overline{N_1}\sigma_1\right)^2 + \left(\overline{N_2}\sigma_2\right)^2\right\}}{\left(\overline{N_{12}}^2 - \overline{N_1}^2 - \overline{N_2}^2\right)^2}}$$

τ_A の誤差

$$\sigma_A = \frac{1}{3}\sqrt{\sigma_{\tau 1}^2 + \sigma_{\tau 2}^2 + \sigma_{\tau 3}^2}$$

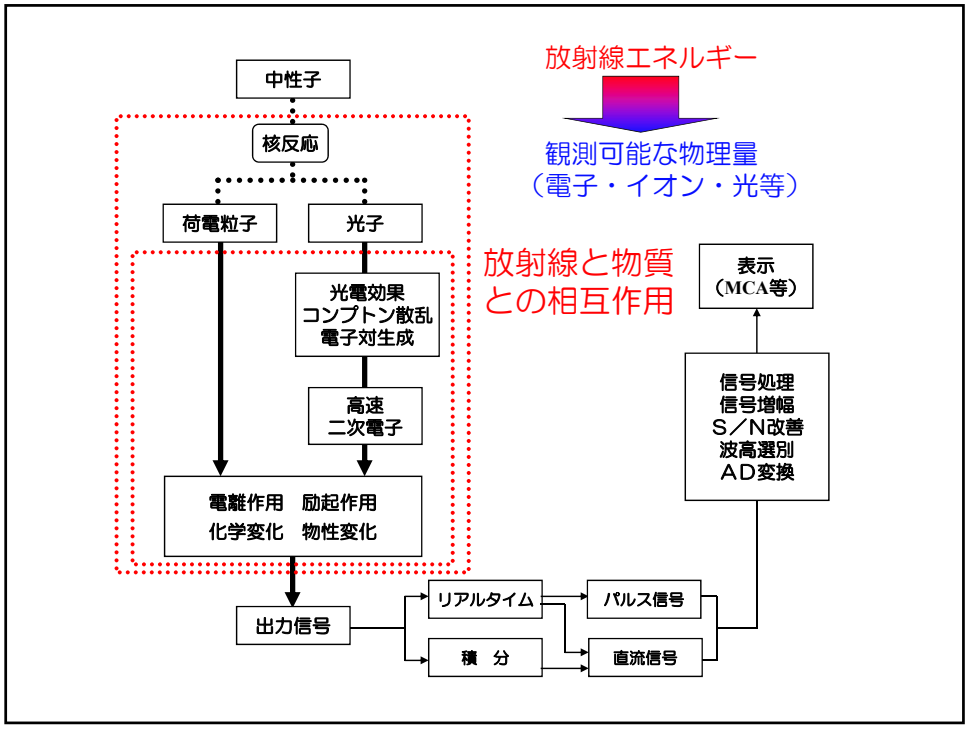
【　メ　モ　】

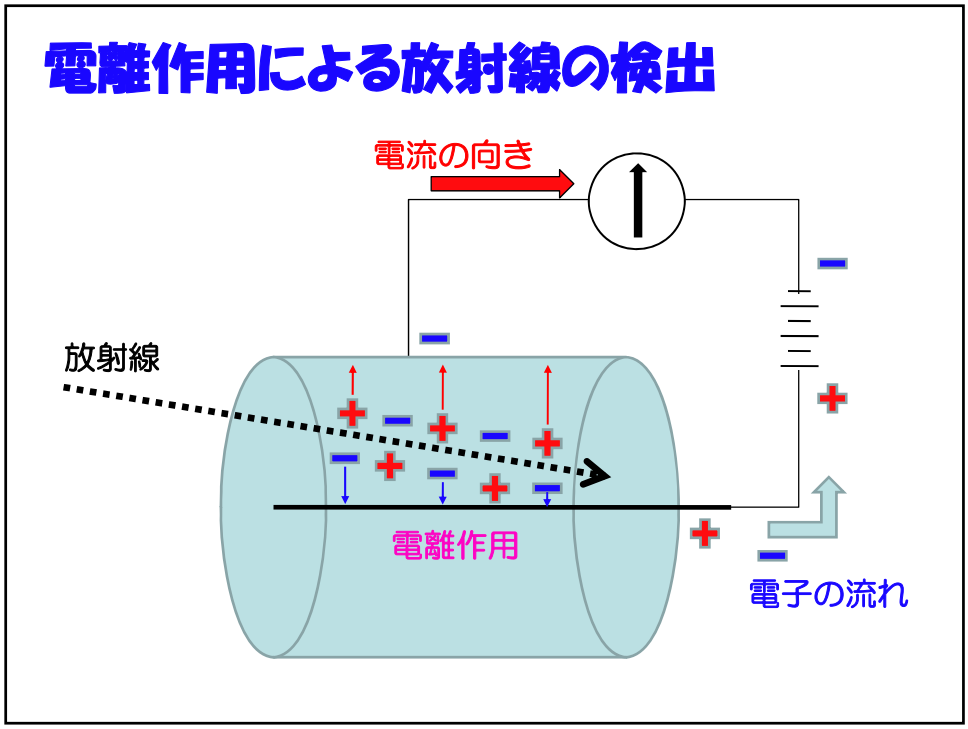
放射線検出の基礎原理

放射線の種類と性質の比較

放射線の３大作用
電離・蛍光・写真

	本　質	おおよその重　さ	電荷	電離作用	蛍光作用	写真作用	物　質透過量
α線	He(ヘリウム)原子核	陽子２ 中性子２	＋２	大	大	大	小
β線	電子	陽子の1840分の１	－１	中	中	中	中
γ線	電磁波	なし	０	小	小	小	大
中性子線	中性子	中性子（＝陽子）	０	小	小	小	大


放射線エネルギー
観測可能な物理量
（電子・イオン・光等）
中性子
核反応
荷電粒子
光子
光電効果
コンプトン散乱
電子対生成
高速
二次電子
電離作用　励起作用
化学変化　物性変化
放射線と物質
との相互作用
表示
（MCA等）
信号処理
信号増幅
S／N改善
波高選別
AD変換
出力信号
リアルタイム
積　分
パルス信号
直流信号


電離作用による放射線の検出
電流の向き
放射線
電離作用
電子の流れ

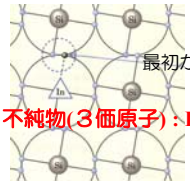
検出原理		相	信号	検出器		測定対象
電離作用	一次電離	気体	電荷 ↓ 電流・電圧	電離箱		γ，X，（β）
		固体(結晶)		半導体検出器	Hp-Ge	γ，X
					Si(Li)	γ，X（低ｴﾈﾙｷﾞｰ）
					Si表面障壁型	α
					Si	γ，X，β
	気体増幅	気体		比例計数管		β，α
		気体(BF_3,^3He)				熱中性子
		気体		GM計数管		β，γ，X
励起作用	蛍光	固体(結晶)	光 ↓ 電荷 ↓ 電圧	シンチレーション検出器	NaI(Tl)	γ，X
		固体(結晶)			CsI(Tl)	γ，X
		固体(結晶)			BGO	γ，X
		固体(多結晶)			ZnS(Ag)	α
		固体(結晶)			LiI(Eu)	熱中性子
		固体			プラスチック	γ，X，β
						速中性子
		固体(有機結晶)			アントラセン	γ，α，β
					スチルベン	速中性子
		液体			有機液体	β，α
						速中性子

半導体検出器の基礎原理

半導体検出器（固体電離箱）

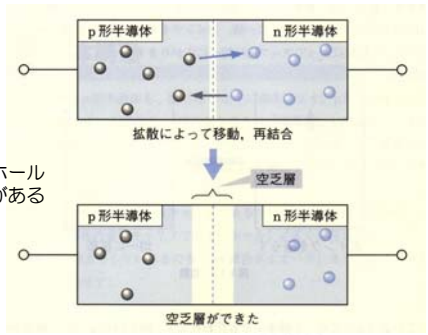
p(positive)形半導体

電荷的に＋(ﾌﾟﾗｽ)



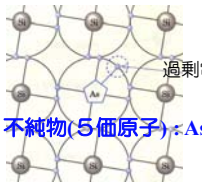
最初からホールがある

不純物(３価原子)：In



n(negative)形半導体

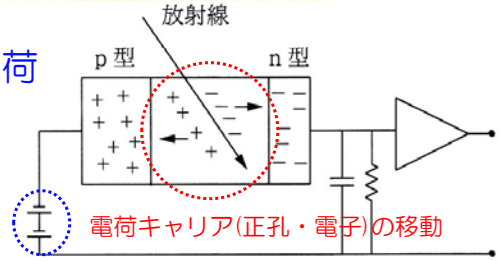
電荷的に－(ﾏｲﾅｽ)



過剰電子

不純物(５価原子)：As

逆方向バイアス負荷
⇨空乏層の拡大



半導体検出器の特長

①検出感度が気体電離箱に比べて約10,000倍も高い
　電離エネルギーの違い（約10倍）
　　→W値：約30eV（気体）、約3eV（半導体）
　密度の違い（約1,000倍）
　　→単位体積当たりに生じるキャリア数（パルス波高）も高い

②分解時間が約1/1,000倍も短い（気体電離に比べ）
　→キャリアの移動速度が速い、空乏層内移動距離が短い

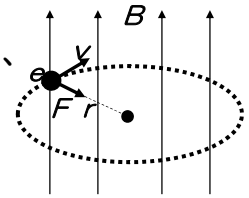
③エネルギー分解能が最も高い
　→パルス波高が最も大きい（キャリア数が著しく多い）

放射線のエネルギー測定法

①パルス波高分析法
　放射線検出器の出力のパルス波高分布を分析する

②吸収法
　放射線が吸収板を透過する程度から、エネルギーを求める
　１）吸収曲線→外挿法
　２）Feather法
　３）Harley法

③磁場偏向法
　磁場中で荷電粒子の偏向の程度から、エネルギーを求める



遠心力　＝　ローレンツ力

$$\frac{mv^2}{r} = evB \Rightarrow r = \frac{mv}{eB} \Rightarrow v = \frac{reB}{m}$$

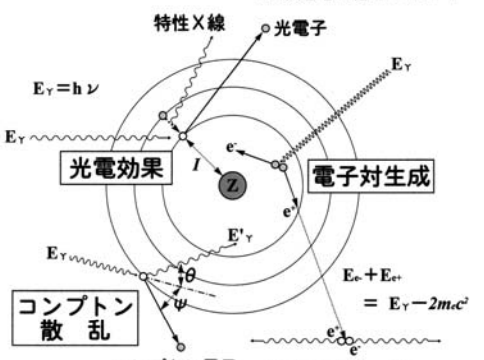
$$E_e = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{1}{2}m\frac{(reB)^2}{m^2} = \frac{(reB)^2}{2m}$$

γ線スペクトル分析装置
と
γ線スペクトル分析例

γ線スペクトル測定法

$E_e = E_\gamma - I$

I：軌道電子結合エネルギー

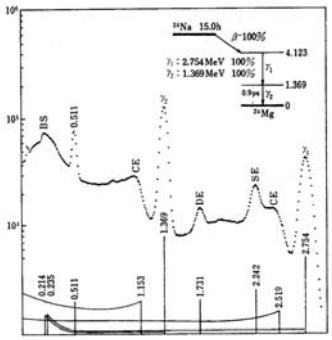


$E_e = E_\gamma - E'_\gamma$

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2}(1 - \cos\theta)}$$

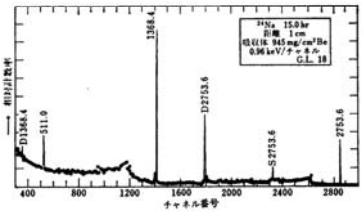
$E_{e^-} + E_{e^+} = E_\gamma - 2m_e c^2$

消滅放射線（γ線）
電子と結合して消滅し、
２個の0.511MeVの光子を、
互いに正反対(180°)方向
に放出する。

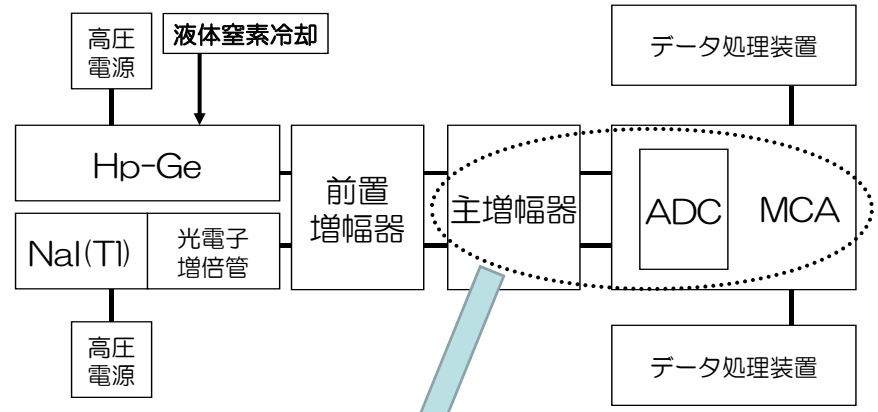


^{24}Naγ線源の測定例

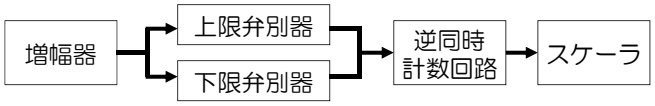
上図:NaI(Tl)検出器、下図:HpGe検出器



Hp-Ge検出器の場合

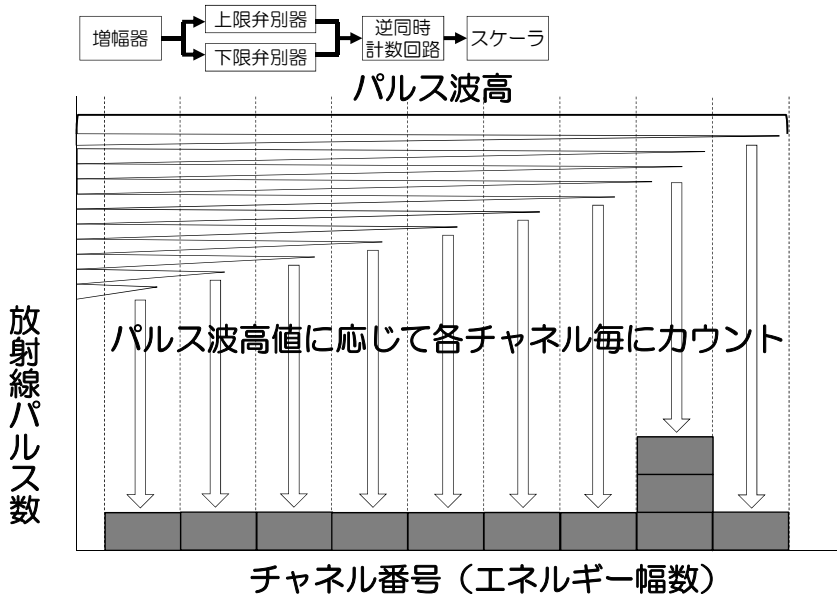


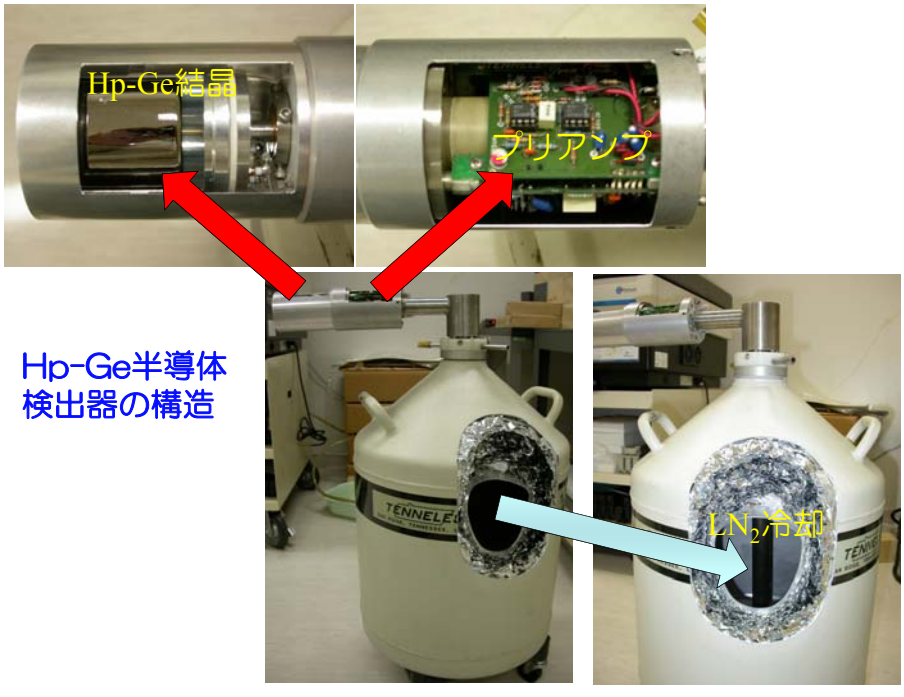
NaI(Tl)検出器の場合



MCAの原理の簡易説明

あるエネルギー幅 $E_{n+1}=E_n+\Delta E$に入る波高値の個数

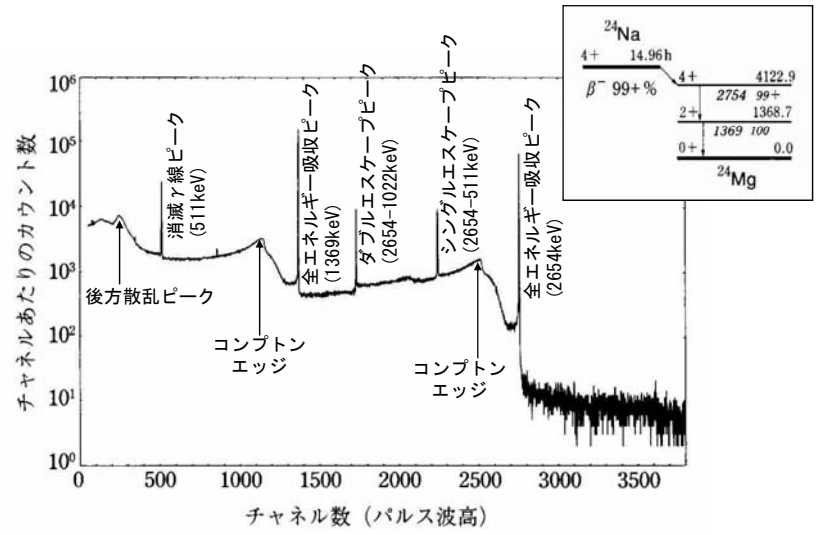




Hp-Ge半導体
検出器の構造

Hp-Ge検出器によるγ線スペクトル測定システム

MCAによるγ線波高分析の一例



未知放射性核種の
定性・定量分析のための
基礎実験

【高純度ゲルマニウム半導体検出器による
γ線波高分析測定】

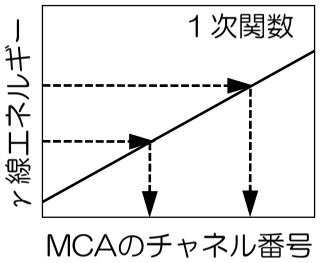
分析手法と記録シート

未知放射性核種の定性・定量分析のための基礎実験

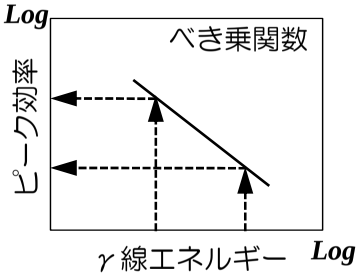
【高純度ゲルマニウム半導体検出器によるγ線波高分析測定】

標準γ線源（γ線エネルギー既知，放射能既知）を用いて
次の検量線を作成しておく。

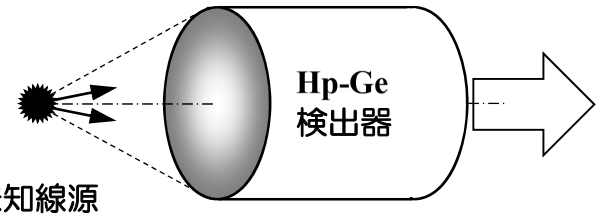
エネルギー校正直線



ピーク効率曲線

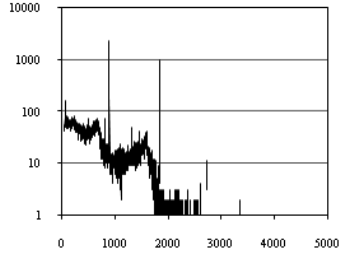


$$\text{ピーク効率} = \frac{\text{ピークエリア ネットカウント率〔cps〕}}{\text{γ線放出率〔γ/s〕}}$$



未知線源
A〔Bq〕

γ線波高分析



γ線放出率
R〔γ/s〕
=A･r/100
r:γ線放出割合
〔%〕

ピーク中心チャネル→γ線エネルギー→γ線放出核種の同定
【エネルギー校正直線】　【核種選定・γ線放出割合特定】

↓

ピーク効率の決定
【ピーク効率曲線】

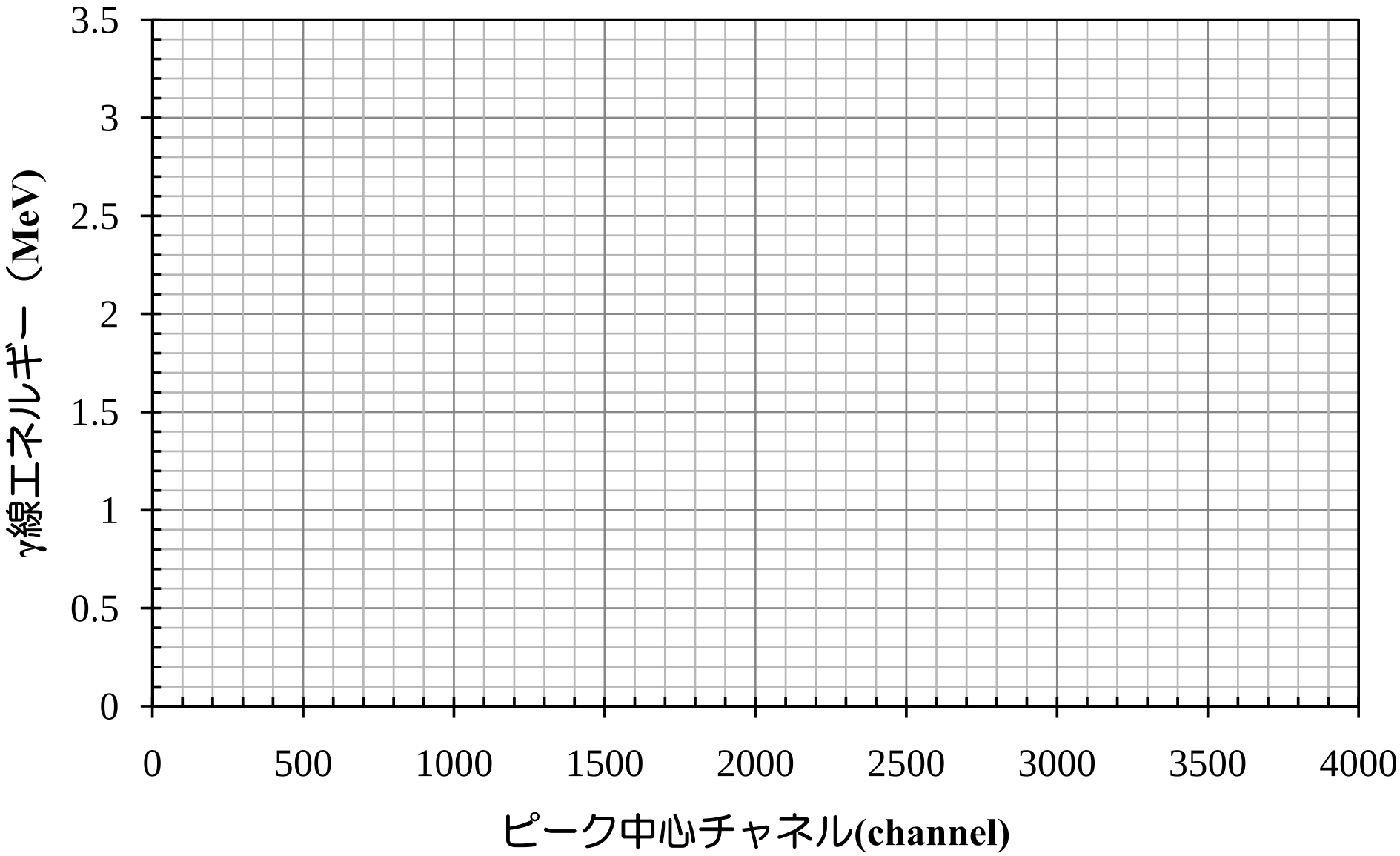
↓

ピークエリアネットカウント率→γ線放出率→ 未知線源の
放射能〔Bq〕算出

標準γ線源測定記録

核種	半減期	壊変形式	γ線エネルギー〔MeV〕	放出割合〔%〕	初期放射能〔kBq〕	現在の放射能〔kBq〕	γ線放出率〔γ/s〕	ピーク中心チャネル	ピークエリアネットカウント率〔cps〕	ピーク効率
^{60}Co	5.271y	β^-	1.173	100	40.4					
			1.333	100						
^{133}Ba	10.52y	EC	0.276	7.2	39.0					
			0.303	18.3						
			0.356	62.1						
			0.384	8.9						
^{137}Cs	30.04y	β^-	0.662	85.1	41.8					
^{152}Eu	13.54y	EC,β^-	0.122	28.6	41.1					
			0.245	7.6						
			0.444	2.8						
			0.867	4.2						
			0.964	14.6						
			1.086	10.21						
			1.112	13.6						
			1.408	21						

*ここで初期放射能は2002.3.1現在の検定放射能〔kBq〕の数量である。


γ線エネルギー（MeV）
3.5
3
2.5
2
1.5
1
0.5
0
0
500
1000
1500
2000
2500
3000
3500
4000
ピーク中心チャネル(channel)

γ線エネルギー（MeV）
ピーク効率

沈殿分離法による ^{90}Sr と ^{137}Cs の核種分離

目的

核分裂生成物を構成する核種のうち、^{90}Sr や ^{137}Cs は核分裂収率が高いうえ、放出放射線のエネルギーも高いことから、高レベル放射性廃棄物の処理処分においては発熱源とみなされ、種々の分離手法が検討されている。ここでは、放射性同位体の分離手法の一つである共沈法を利用し、^{90}Sr と ^{137}Cs の核種分離を試みる。また、非密封アイソトープの取り扱いと試料形態が及ぼす放射線測定への影響について学ぶ。

原理

Sr はアルカリ土類金属元素（第 2 族）であり、水溶液中では 2 価の陽イオンとして溶存する。Sr(II)は、硫酸イオン（SO_4^{2-}）により $SrSO_4$ の白色沈殿を生成し、またアルカリ性水溶液中では炭酸イオン（CO_3^{2-}）により $SrCO_3$ として沈殿する。一方、Cs はアルカリ金属元素（第 1 族）であり、SO_4^{2-}や CO_3^{2-}の共存下においても 1 価の陽イオンとして安定に溶存する。従って、同位体担体の共存下において沈殿試薬を添加することで、^{90}Sr を沈殿として、^{137}Cs を溶液として核種分離することができる。

$$^{90}\mathrm{Sr} \xrightarrow[28.8\mathrm{y}]{\beta} {}^{90}\mathrm{Y} \xrightarrow[64.1\mathrm{h}]{\beta} {}^{90}\mathrm{Zr}$$

$$^{137}\mathrm{Cs} \xrightarrow[30.04\mathrm{y}]{\beta} {}^{137\mathrm{m}}\mathrm{Ba} \xrightarrow[2.552\mathrm{m}]{\mathrm{IT}} {}^{137}\mathrm{Ba}$$

図 1　^{90}Sr、^{137}Cs の放射壊変形式

試験条件

使用核種　：^{90}Sr, ^{137}Cs（2 核種混合系）

放射能溶液：＿＿＿＿＿Bq(^{90}Sr)/ml, ＿＿＿＿＿Bq(^{137}Cs)/ml　（in 0.1M HNO_3）

同位体担体：$Sr(NO_3)_2$=＿＿＿＿mol/dm^3, $CsNO_3$=＿＿＿＿mol/dm^3　（in 0.1M HNO_3）

沈殿試薬　：1 mol/dm^3 Na_2CO_3

沈殿洗浄液：0.1 mol/dm^3 Na_2CO_3

放射線測定装置

^{90}Sr 放射線測定：＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿

^{137}Cs 放射線測定：＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿＿

方法　※操作フローシート（図 2）に従って行う。

・ろ過した沈殿やフィルターには溶液が付着しており、その溶液中に含まれる放射能は、沈殿物の放射線計測の妨害となるため、沈殿の洗浄回数の調査を行う（計測①）。

・計測中の待機時間を利用して、初期放射能（A_0 と B_0）を測定するためのサンプルを調製する。初期放射能測定の方法を参照。

・沈殿の計測値（A_0 と A）とろ液の計測値（B_0 と B）から、^{90}Sr と ^{137}Cs についてそれぞれの分離率を求める。希釈率に注意する。

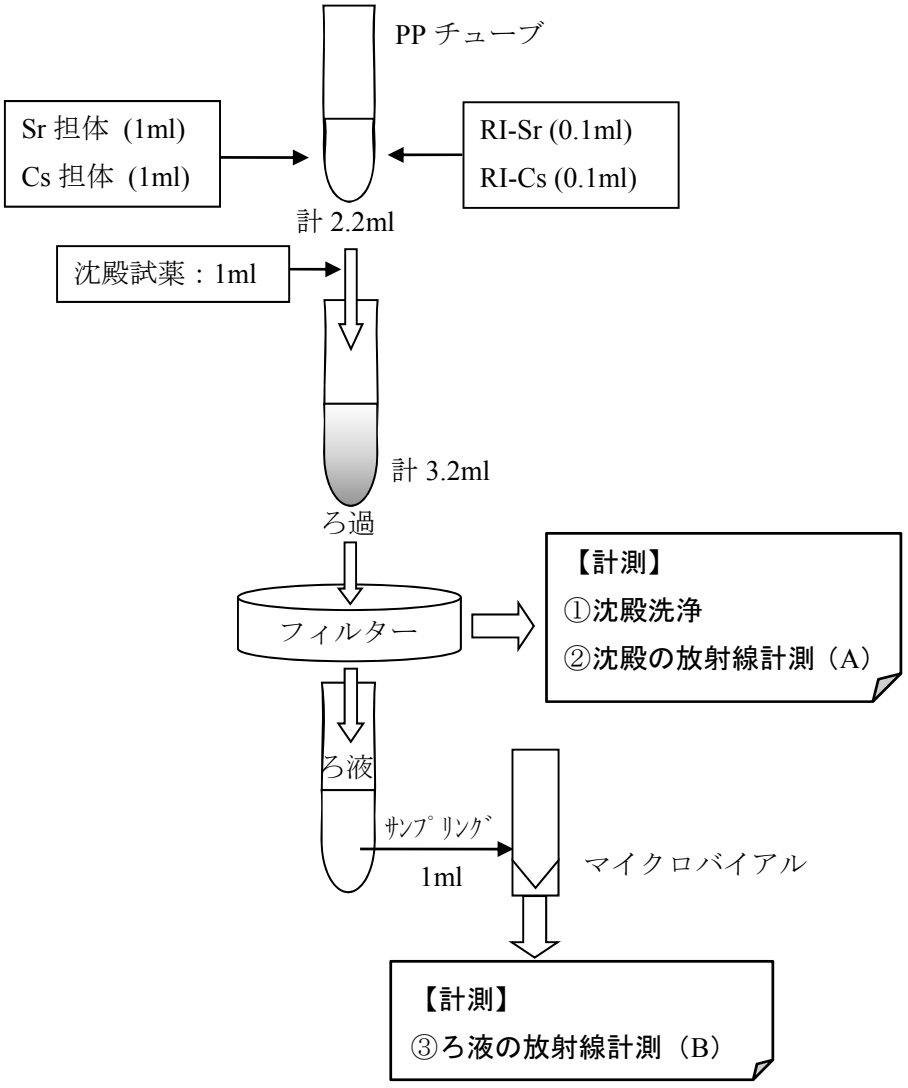


図 2　操作フローシート

初期放射能測定の方法

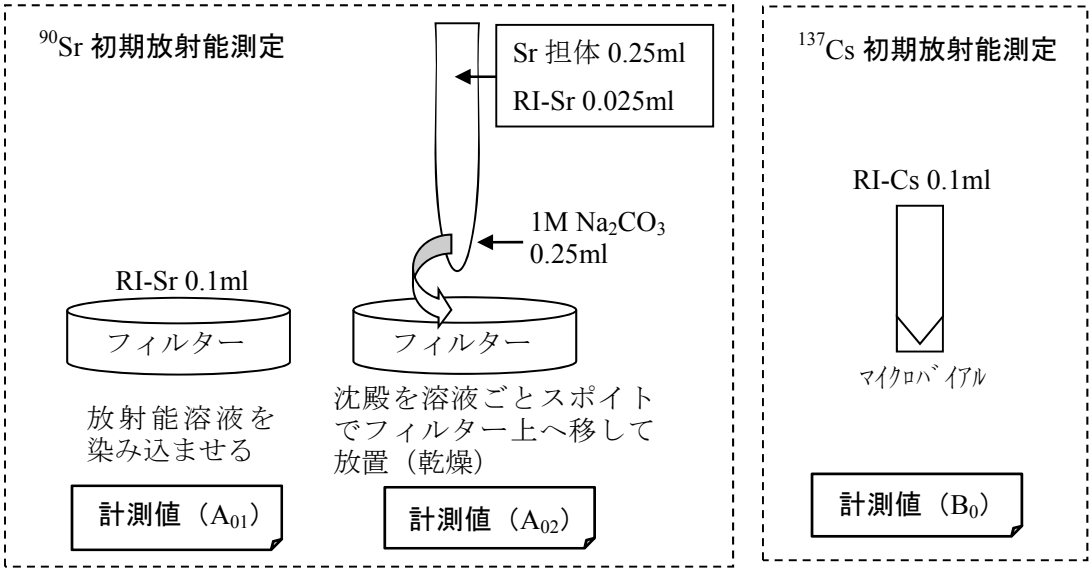
・^{137}Cs の初期放射能

マイクロバイアルに RI-Cs 溶液を 0.1ml 入れる。→**放射線計測**（B_0）

・^{90}Sr の初期放射能

フィルターに RI-Sr 溶液を 0.1ml 染み込ませる。→**放射線計測**（A_{01}）

PP チューブに Sr 担体溶液 0.25ml、RI-Sr 溶液 0.025ml を添加し、沈殿試薬（1M Na_2CO_3）0.25ml を加えて沈殿を生成させる。これをスポイトで溶液ごと吸い取り、フィルター上へ移して自然乾燥させる。→**放射線計測**（A_{02}）



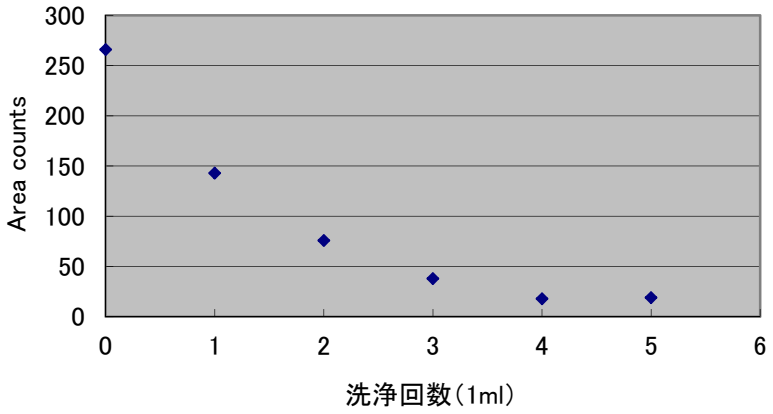


図3 沈殿洗浄回数と662keVピーク面積の関係

表 1　洗浄回数調査

洗浄回数	測定時間 (　　)	カウント数	カウント率 (　)	誤差

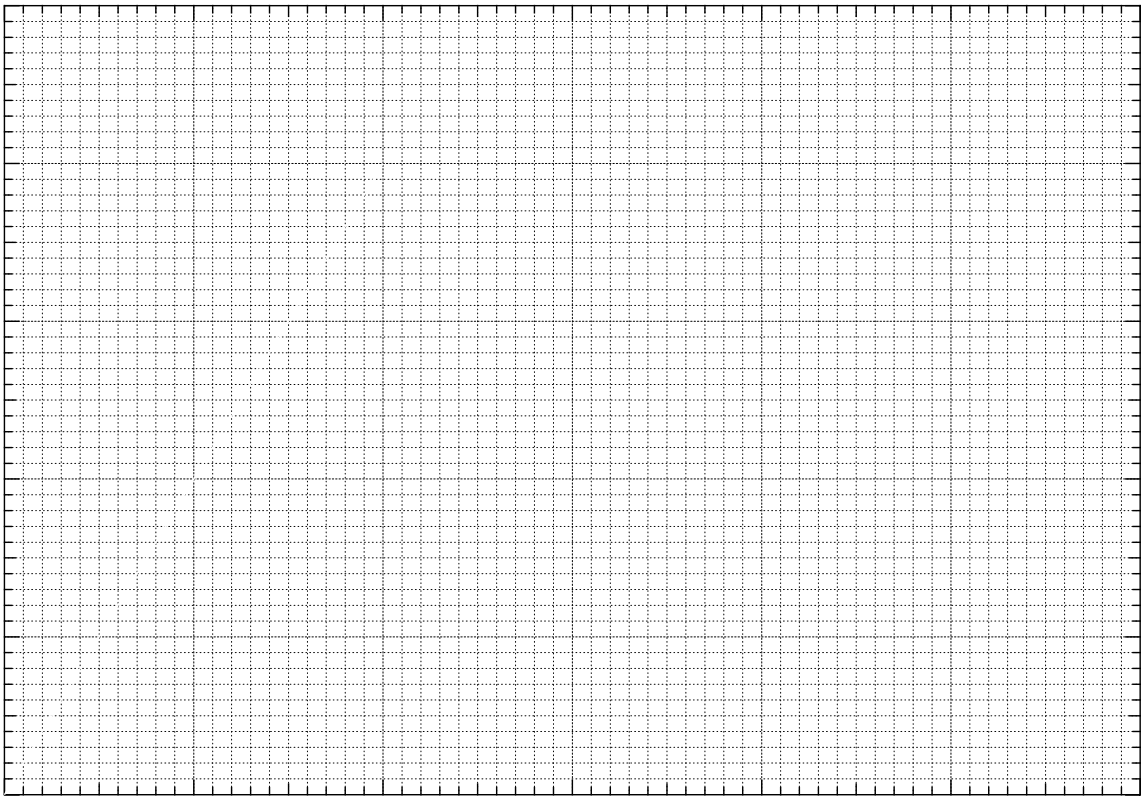


表 2　^{137}Cs の放射線計測結果

測定試料	測定時間(　　)	計数値	計数率(　　)	誤差
BG				

表 3　^{90}Sr の放射線計測結果

測定試料	測定時間(　　)	計数値	計数率(　　)	誤差
BG				

マイクロピペットの校正（100-1000μL）

1	
2	
3	
4	
5	
6	
7	
8	
9	
10	
平均	

マイクロピペットの校正（10-100μL）

1	
2	
3	
4	
5	
6	
7	
8	
9	
10	
平均	

【参考図書】

1. 「放射線計測ハンドブック」G. F. Knoll,（訳: 木村, 阪井）日刊工業新聞社
2. 「放射線・アイソトープ 講義と実習」日本アイソトープ協会編, 丸善
   「ラジオアイソトープ 講義と実習」「ラジオアイソトープ 基礎から取扱まで」等
3. 「放射線計測」プライス著, コロナ社
4. 「アイソトープ手帳 10 版」日本アイソトープ協会編，丸善

添付４　実践的原子力人材育成講義コースで用いた講義資料（千代田テクノル阿部講師）

実践的原子力人材育成講義コース

講師　阿部　正明　先生
(株)千代田テクノル

第1回　平成23年2月14日(月)
時間　13:30～14:30
東海大学 湘南校舎　17号館研修室2

放射線管理の実際

平成23年2月14日
原子力総合技術プログラム

放射線の歴史

- 1895年　X線の発見　　レントゲン
- 1896年　放射能Uの発見　　ベクレル
- 1898年　ラジウム・ポロニウムの発見
  キュリー夫人
- 骨折の診断に利用
- 研究者の赤班、脱毛、潰瘍などの異常

放射線の利用

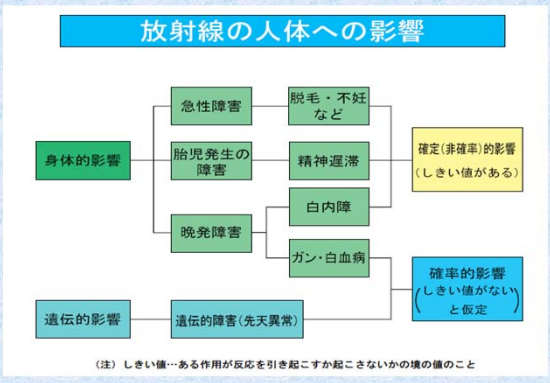
- 医療分野：核医学診断、癌治療
- 医学生物学分野：遺伝子研究・・・
- 農学分野：発芽防止、食品照射、害虫駆除
- 工業分野：ラジオグラフィー、半導体製造・・・
- 理学分野：年代測定・・・
- 原子力分野：エネルギー
- 環境分野：有害物質の除去・・・

放射線のリスク

- 放射線被ばく・・・外部被ばく、内部被ばく
- 汚染・・・内部被ばく
- 急性障害、晩発性障害
- 身体的影響、遺伝的影響
- 確定的影響・・・しきい値　　白血球の減少
- 確率的影響・・・　　癌の発症

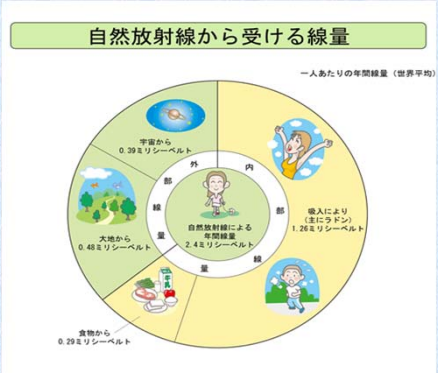
人体への影響

電気事業連合会資料



自然放射線

電気事業連合会資料



放射線の管理

- 線源の管理
  放射性物質、放射線発生装置等
- 人の管理
  作業者、周辺公衆一般
- 場の管理
  作業環境、一般環境

関　連　法　令

- ICRP　International Commission on Radiological Protection
  国際放射線防護委員会
- IAEA　International Atomic Energy Agency
  国際原子力機関
- 原子力基本法
- 放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律
- 核燃料物質、核原料物質、原子炉及び放射線の定義に関する法律
- 医療法
- 薬事法　　他

放射線防護の体系

(1)放射線防護の目的
　利用を不当に制限しない適切な防護基準
(2)放射線防護の対象
　職業人及び一般公衆
(3)被ばくの種類
　①職業被ばく
　②医療被ばく　診断、治療、付添い者
　③公衆被ばく　自然放射線は含めない
(4)放射線防護の原則
　①行為の正当化　便益が被ばく損害を上回る事
　②防護の最適化　合理的に達成し得る限り低く
　③個人線量の限度

医療における放射線の管理

- 医療法、薬事法、障害防止法等による規制
- 核医学検査、レントゲン検査
- リニアック等の照射装置、^{60}Co等の線源による放射線治療
- 従事者の被ばく管理
- 放射線機器、放射性医薬品の管理・・・人に投与された放射性医薬品の扱い
- 厚生労働省

研究施設における放射線管理

- 障害防止法等による規制
- サイクロトロン等大規模な放射線施設
- トレーサー等非密封線源の取扱い
- 非破壊検査などの移動使用
- 従事者の被ばく管理
- 線源の紛失や汚染事故の防止
- 文部科学省

原子力施設における放射線管理

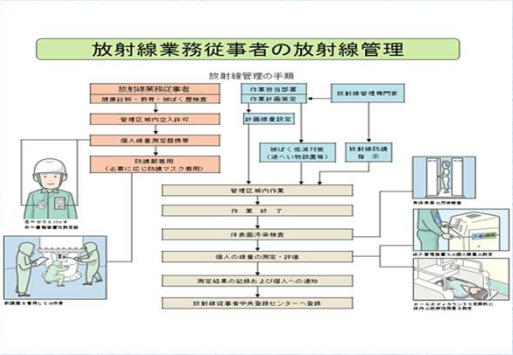
原子力発電では、運転にともない、さまざまな放射線が発生します。原子力発電所の安全確保のためには放射線や、放射線を出す放射性物質の管理（放射線管理）が必要です。原子力発電所では発電所で働く人と発電所周辺の環境を守るため24時間厳重な放射線管理を行っています。

経済産業省、文部科学省

国内の原子炉　2011.02現在

	基 数	発電量(万kW)
運転中の原子炉	56	5037.9
建設中の原子炉	3	303.6
計画中の原子炉	10	135.2
合計	69	5476.7
廃止した原子炉	3	34.3

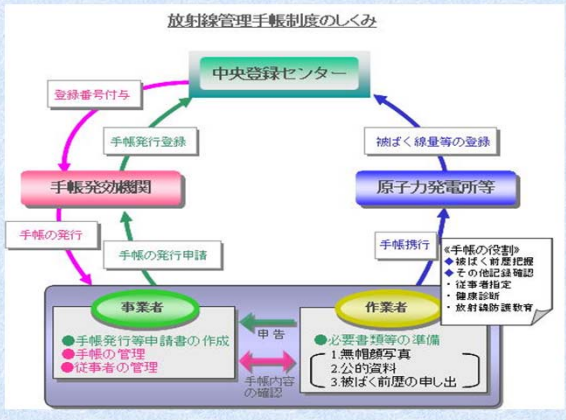
管理の体系　電気事業連合会資料



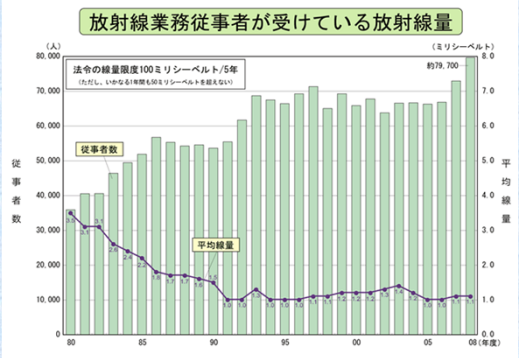
放射線管理手帳

昭和52年、財団法人　放射線影響協会に放射線従事者中央登録センターが設立され、放射線管理手帳制度が発足。

手帳制度は全国統一様式の放射線管理手帳を用いて、原子力発電所等の原子力施設に立ち入る者の被ばく前歴を迅速、かつ的確に把握すること及び原子力施設の管理区域内作業の従事に際して必要な放射線管理情報を原子力事業者等に伝達することを目的としている。



個　人　管　理　電気事業連合会資料



個　人　管　理

- 管理区域入域手続
- 健康診断・電離健康診断
- ホールボディカウンター
- 作業登録　　計画被ばく
- 個人警報線量計　　日々線量
- 個人線量計　　月線量
- 年度線量報告

放射線防護個人装備

- 服装　パンツ1枚（自前：希望により紙パンツ）
  シャツ、長下着
  つなぎ服（カバーオール）
- 装備　綿手袋、ゴム手袋、軍手、靴下
  アノラック型保護服
- 呼吸器　半面マスク、全面マスク、
  電動式フードマスク
  空気呼吸器、エアーラインマスク

高流量ダストサンプラー

タングステンマット・シート

1. 特長

①高比重

・比重12で、鉛以上の放射線遮へい能力があります。

②柔軟性

・柔軟性に優れ、配管等の曲面にも対応可能です。

③加工が容易

・ハサミ、キリ等で簡単に切断、穴あけが可能です。

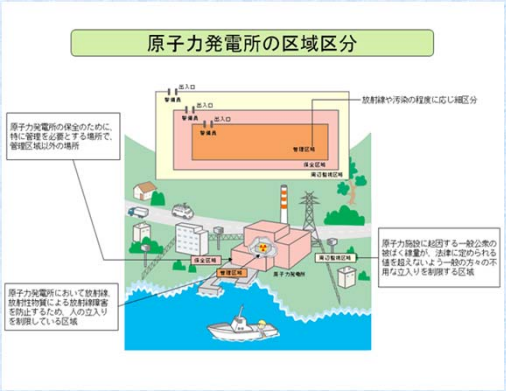
④環境にやさしい

・鉛害の危険性がなく環境や人にやさしい材料です。

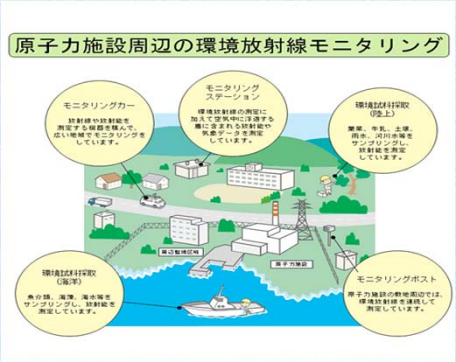
環　境　管　理

- 管理区域：発電所の建物内部の放射線管理が必要な箇所　　B区域、C区域、放射能標識
- 保全区域：原子力発電所の保全のために特に管理を必要とする場所で、管理区域以外の場所。
- 周辺監視区域：原子力発電所の敷地に業務上関係ない人が立ち入ることがないよう周辺を柵等で区画している。

環　境　管　理　　電気事業連合会資料



環　境　管　理　　電気事業連合会資料



環　境　管　理　　電気事業連合会資料

廃棄物の取扱い

- 管理区域内で発生した廃棄物はすべて管理対象
- 低レベル廃棄物
- 高レベル廃棄物
- 液体・・・コンクリート固化等の処置
- ランドリー設備
- 焼却設備

角型廃棄物容器　荷重試験

課　　題

- 廃棄物の処理、処分

- 核燃料の再処理
- 核燃料サイクルの運用

- クリアランス